



**CALIBRAÇÃO DE UM SISTEMA DE CÂMARA DE IONIZAÇÃO
DE POÇO $4\pi\gamma$ PARA MEDIDAS DE ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS**

Mauro da Silva Dias

**DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 087
IEA - DT - 087**

NOVEMBRO/1978

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach – Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Beretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pieroni

DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 087
IEA - DT - 087

NOVEMBRO/1978

**CALIBRAÇÃO DE UM SISTEMA DE CÂMARA DE IONIZAÇÃO
DE POÇO $4\pi\gamma$ PARA MEDIDAS DE ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS**

Mauro de Silva Dias

**Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em
Ciências" - Orientador Dr. Roberto Fulfaro.
Apresentada e defendida em 22 de março de 1978, na
Escola Politécnica de Universidade de São Paulo.**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
SÃO PAULO - BRASIL**

Série DISSERTAÇÃO E TESE IEA

INIS Categories and Descriptors

E41

Ionization chamber

Calibration

Four-Pi counting

Activity meters

Gamma detection

..Nota: A redação, ortografia e conceitos são de responsabilidade dos autores.

SUMÁRIO

	Página
CAPÍTULO 1	
CONSIDERAÇÕES GERAIS	1
1.1 – Introdução e Objetivos	1
1.2 – Descrição de uma Câmara de Ionização $4\pi\gamma$, Típica	3
1.3 – Métodos Principais para a Medida de Corrente	4
1.3.1 – Método de Taxa-de-Deriva	4
1.3.2 – Método de Townsend	6
1.3.3 – Comentários sobre os Métodos	7
1.3.4 – Escolha do Método	7
1.4 – Sistemas Utilizados por outros Autores	8
1.4.1 – Sistema de Taylor	8
1.4.2 – Sistema de Ghiho	8
CAPÍTULO 2	
DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE CÂMARA DE IONIZAÇÃO	10
2.1 – Princípios de Operação do Sistema	10
2.2 – Componentes do Sistema	10
2.2.1 – Câmara de Ionização Utilizada	10
2.2.2 – Eletrômetro	12
2.2.3 – Fonte de Alta Tensão	13
2.2.4 – Módulo de Controle e Transferência de Dados	13
a) Discriminadores	13
b) Interface	14
c) Relógio Digital	14
d) Cronômetro Digital	14
e) Oscilador	14
2.2.5 – Voltímetro Digital	14
2.2.6 – Impressora Digital	15
2.3 – Critérios Adotados para a Calibração do Sistema	15
2.3.1 – Método de Padronização das Soluções em Atividade Específicas	15
2.3.2 – Método para o Sistema de Câmara de Ionização	15
a) Seleção das Ampolas	15
b) Preparação e Selagem das Ampolas	16
c) Suportes de Ampolas Utilizados	16
d) Cálculo do Fator de Corrente Relativa $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$	17
e) Determinação do Fator de Calibração	19
f) Determinação da Atividade pelas Curvas de Eficiência Relativa Gama e Beta ..	19

CAPÍTULO 3

RESULTADOS EXPERIMENTAIS	21
3.1 – Desempenho da Câmara de Ionização	21
3.1.1 – Determinação da Tensão de Operação	21
3.1.2 – Sensibilidade	21
3.1.3 – Corrente de Fundo	21
3.1.4 – Variação de Resposta com a Posição da Fonte	26
3.1.5 – Variação de Resposta com a Corrente de Ionização no Volume Sensível do Detector	30
3.2 – Medidas com o Monitor	32
3.2.1 – Instabilidade no Tempo	32
3.2.2 – Fator de Mudança de Escala	32
3.2.3 – Fator de Normalização	32
3.3 – Medidas com Radionuclídeos	35
3.3.1 – ^{139}Ce	36
3.3.2 – ^{22}Na	40
3.3.3 – ^{60}Co	43
3.3.4 – ^{134}Cs	45
3.3.5 – ^{54}Mn	51
3.3.6 – ^{24}Na	53
3.3.7 – ^{198}Au	59
3.3.8 – ^{241}Am	62
3.3.9 – ^{42}K	64
3.3.10 – Medida de Emissores Beta Puros	67

CAPÍTULO 4

DETERMINAÇÃO DAS CURVAS DE EFICIÊNCIA RELATIVA EM FUNÇÃO DA ENERGIA	75
4.1 – Introdução	75
4.2 – Método Utilizado para a Obtenção das Curvas	75
4.2.1 – Construção das Curvas de Eficiência Beta em Função da Energia Beta Máxima ...	76
4.2.2 – Construção das Curvas de Eficiência Gama em Função da Energia Gama	78
4.3 – Testes de Consistência para as Curvas de Eficiência Obtidas	84
4.3.1 – ^{134}Cs	84
4.3.2 – ^{42}K	87
4.3.3 – Observações sobre os Resultados do ^{134}Cs e ^{42}K	88
4.3.4 – Considerações sobre a Exatidão na Interpolação das Curvas de Calibração	88

CAPÍTULO 5

DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS ADICIONAIS DO SISTEMA DE MEDIDAS	90
--	-----------

	Página
5.1 – Considerações Teóricas	90
5.2 – Resultados Experimentais Obtidos com os Radionuclídeos ^{60}Co e ^{203}Hg	92
CAPÍTULO 6	
CONCLUSÕES	97
APÊNDICE	
MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE ESPECÍFICA DAS SOLUÇÕES RADIOATIVAS EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS $4\pi(\beta,X)\text{-}\gamma$	99
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	105

CALIBRAÇÃO DE UM SISTEMA DE CÂMARA DE IONIZAÇÃO DE POÇO $4\pi\text{-}\gamma$ PARA MEDIDAS DE ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS

Mauro da Silva Dias

RESUMO

Neste trabalho é feita a Calibração de um Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\text{-}\gamma$, instalado no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Energia Atômica, utilizado para a determinação de Atividade de soluções radioativas.

Essa determinação de Atividade é feita por dois Métodos: 1) Método Direto, por comparação entre a resposta no Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\text{-}\gamma$ das soluções de atividade desconhecida e a resposta de solução do mesmo radionuclídeo, padronizada num Sistema Absoluto por Coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$, também instalado no L.M.N. Por esse método foram padronizados os radionuclídeos: ^{241}Am , ^{139}Ce , ^{198}Au , ^{22}Na , ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{42}K e ^{24}Na . Para esse caso, a exatidão alcançada na determinação da Atividade é da ordem de 0,2 a 0,4%. 2) Método Indireto, utilizando as curvas de Eficiência Relativa Gama e Beta, determinadas neste trabalho. Este método se aplica a qualquer outro radionuclídeo, não incluído na relação do método Direto. Para esse caso a exatidão atingida depende essencialmente da faixa de energia do radionuclídeo considerado e da exatidão nas intensidades gama absolutas, que são obtidas da literatura. Em geral, a incerteza é maior que pelo método Direto mas pode atingir $\sim 0,2\%$ em casos favoráveis.

Os limites inferior e superior de Atividades mensuráveis é função do Radionuclídeo. Em geral estes limites vão desde alguns micro-curies até vários mili-curies, que são aceitáveis para a maioria dos casos.

O método de preparação das amostras é simples e o tempo dispendido para a medida, em geral, é de apenas alguns minutos. Estes são alguns dos aspectos que tornam a utilização do Sistema de Câmara de Ionização vantajosa em relação a outros sistemas de medidas.

CAPÍTULO 1

CONSIDERAÇÕES GERAIS

1.1 – Introdução e Objetivos

O Método Absoluto de Medidas de Atividade de Radionuclídeos por Coincidências $4\pi\beta\gamma$ é universalmente conhecido no campo da Metrologia Nuclear pela sua alta precisão na padronização de soluções radioativas, uma vez que pode alcançar graus de confiabilidade de até 99,95%.

Entretanto tal método apresenta certos inconvenientes:

- 1) necessita de uma técnica elaborada na preparação de amostras, o que torna a medida demorada. Para obter-se uma incerteza inferior a alguns décimos de por cento, normalmente são necessários vários dias;

Aprovada para publicação em Abril/1978.

- 2) em virtude de problemas de saturação do detector, é imposto um limite superior na medida de atividade, da ordem de alguns micro-curies por grama de solução. No caso de atividades mais altas, são feitas várias diluições de precisão; estas soluções diluídas são calibradas e a atividade da solução original é obtida pelos fatores de diluição conhecidos. Pelo menos duas diluições são necessárias para verificar a consistência dos resultados.

Nessas condições torna-se clara a importância de se utilizar técnicas de referência, isto é, sistemas de medidas que, uma vez calibradas, tornam possível a medida de atividades em intervalos de tempos curtos, ficando a precisão essencialmente limitada pela calibração primária.

Há certos requisitos indispensáveis para um sistema deste tipo:

- 1) alta estabilidade no tempo;
- 2) precisão de medida, pelo menos igual a obtida pelo método absoluto (calibração primária);
- 3) procedimento simples na preparação de amostras. De preferência ser possível a medida das soluções diretamente em ampolas seladas;
- 4) ter uma faixa grande de atividades mensuráveis (desde alguns micro-curies até vários mili-curies).

Comparando-se com outros métodos de medida, como aqueles que utilizam detectores de Ge-Li e cintiladores de NaI(Tl), a Câmara de Ionização $4\pi\gamma$ apresenta as vantagens adicionais de ser relativamente simples em sua construção e funcionamento, o que contribui para uma alta estabilidade no tempo.

O propósito deste trabalho é a Calibração de um Sistema de Medidas de Atividade por Meio de uma Câmara de Ionização de Poço $4\pi\gamma$. Este sistema tem por finalidade complementar o Laboratório de Padronização de Radionuclídeos do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, servindo como um sistema de referência em medidas de atividade.

Nos laboratórios de padronização, as Câmaras de Ionização $4\pi\gamma$ tem sido usadas com sucesso para a verificação da consistência de resultados em sistemas absolutos em ocasiões diferentes e também em testes gravimétricos, como por exemplo na determinação de fatores de diluição das soluções radioativas. A sua alta estabilidade faz com que seja possível ainda a determinação precisa da Meia-Vida de radionuclídeos.

Além de satisfazer os requisitos acima mencionados, o Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\gamma$ pode ser usado na determinação da Atividade de certos radionuclídeos, cujos esquemas de desintegração tornam a calibração difícil ou demorada por outros sistemas. Neste caso, a exatidão é obtida e satisfatória para a maioria das determinações de atividade.

A determinação da Atividade no Sistema de Câmara de Ionização pode ser feita por dois métodos:

a) Método Direto:

Por medida comparativa da resposta da Câmara da solução em questão com uma solução padronizada pelo sistema absoluto. Isto é feito pelo uso do Fator de Calibração (F), determinado neste trabalho.

b) Método Indireto:

Por interpolação em uma curva de Eficiência Relativa Gama (ϵ_γ) em função da energia. Esta curva foi determinada no presente trabalho em diferentes condições, as quais estão discutidas no texto. Neste método, a exatidão é essencialmente limitada pelo conhecimento dos parâmetros do esquema de decaimento do radionuclídeo considerado.

1.2 – Descrição de uma Câmara de Ionização “4 π - γ ” Típica

Geralmente, uma câmara de ionização “4 π - γ ”, tem a forma de cilindro com capacidade da ordem de vários litros, possuindo um poço coaxial, por onde se introduz a amostra radioativa, (Figura 1.1).

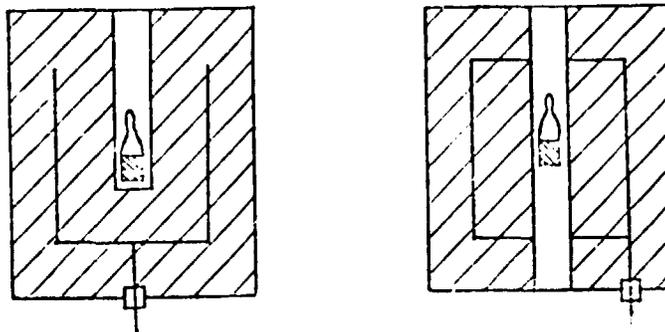


Figura 1.1 – Câmaras de Ionização 4 π - γ

Possui três eletrodos cilíndricos coaxiais, normalmente construídos de cobre ou alumínio, sendo os externos para alta tensão e o interno para a coleção do sinal. Em geral, os conectores do detector se encontram na face inferior; o conector de sinal colocado coaxialmente e o de alta tensão fora de centro, a alguns centímetros do conector de sinal. Pode possuir, ainda paredes externas aos eletrodos para precaver o operador contra a alta tensão, usualmente construídas de ferro, aço ou latão, ligadas a um potencial de terra.

Na construção de um detector deste tipo, todo o cuidado é tomado no sentido de se evitar impurezas radioativas nos seus constituintes, principalmente emissores alfa, como é o caso dos Lantanídeos, Actinídeos, Chumbo e outros, a fim de minimizar a corrente de fundo do detector.

Por sua geometria, a Câmara de Ionização 4 π - γ possui uma região no interior do poço, onde a sensibilidade é aproximadamente constante, o que permite a medida de amostras não puntiformes, particularmente soluções em ampolas. A variação típica de sensibilidade, em função da posição ao longo do detector, é da ordem de 0,2% por cm. A variação ao longo da direção transversal ao eixo é cerca de uma ordem de grandeza maior.

As câmaras de ionização “4 π - γ ” usualmente empregadas são preenchidas com ar ou argônio. Para uma câmara de 3 litros preenchida com ar à pressão atmosférica, a corrente de ionização produzida por uma fonte de 1 μ Ci de ^{60}Co é da ordem de 5×10^{-14} A⁽⁶⁾. Como este valor é apenas 5 vezes a corrente de fundo é conveniente efetuar-se as medidas de atividades somente a partir de 10 μ Ci. Para maior sensibilidade e precisão, utiliza-se câmaras de ionização 4 π - γ preenchidas com argônio à pressão de até 20 atmosferas. Nesse caso pode-se conseguir uma melhora de até uma ordem de grandeza na relação corrente-fonte corrente de fundo⁽²⁷⁾.

No caso da citada câmara de ionização de ar à pressão atmosférica, a atividade de ^{60}Co máxima mensurável é da ordem de 100 mCi⁽⁶⁾, enquanto que para a preenchida a 20 atmosferas de argônio é da ordem de 10 mCi, como será indicado no presente trabalho.

A coleção dos íons é feita numa região de tensão onde não ocorre a recombinação dos íons e nem a sua multiplicação, o que torna a Câmara de Ionização um detector inerente estável. A região de tensão onde a saturação de coleção é atingida depende da geometria da câmara além da natureza e pressão do gás, normalmente está entre 300 e 600 Volts positivos, ficando o eletrodo coletor próximo a um potencial de terra⁽²⁷⁾.

Usualmente mede-se o sinal do coletor através da quantidade de carga produzida durante um intervalo de tempo prefixado. Esta carga será proporcional ao número de pares de íons produzidos na Câmara, que é determinado pelo número de gamas que interagirá com o volume útil do detector e pela energia média transferida ao gás por gama a ser detectado. Desse modo, a Atividade é determinada pela corrente média produzida no coletor durante este mesmo intervalo de tempo.

Para uma dada atividade, o número de gamas que interage com o volume sensível do detector e a energia média transferida ao gás são funções do tipo de esquema de desintegração do radionuclídeo estudado. Portanto o fator de Calibração deve ser determinado para cada radionuclídeo.

A câmara de ionização $4\pi\gamma$ funciona como uma fonte de corrente de alta impedância ($> 10^{14}$ ohms e alguns pF). Esta corrente está sujeita às flutuações devido à natureza estatística da desintegração radioativa e da ionização no detector.

A flutuação é maior para atividades pequenas. Para uma mesma corrente, será maior para radionuclídeos de gamas mais energéticos.

Para a medida de corrente, normalmente utiliza-se um eletrômetro que em princípio é um amplificador operacional de alto ganho, alta impedância de entrada e baixa corrente parasita ("off-set-current"). Neste tipo de aplicação, o eletrômetro mais frequentemente usado é o Eletrômetro de Capacitor (ou Lâmina) Vibrante (ECV) ("Vibrating Reed Electrometer") porque possui a mais alta impedância de entrada e a mais baixa corrente parasita de todos. Além disso, possui uma taxa de deriva bastante baixa.

Os métodos utilizados para a medida precisa da corrente, estão baseados na medida da variação de tensão nos terminais de um capacitor, colocado no circuito de realimentação do eletrômetro, quando este é carregado pela corrente proveniente do detector. Estes métodos estão apresentados, pormenorizadamente, mais adiante. Para medidas relativas, como é o caso do presente trabalho, não há necessidade do conhecimento preciso do valor da capacitância, porém é necessário que o valor permaneça constante com o tempo.

1.3 – Métodos Principais para a Medida de Corrente Dentro da Faixa de Interesse (10^{-8} a 10^{-14} A)⁽¹⁰⁾

1.3.1 – Método de Taxa-de-Deriva

A Figura 1.2 mostra o esquema geral do método. C_i e R_i são respectivamente a capacitância e resistência internas da Câmara de Ionização. C_e e R_e são a capacitância e a resistência de entrada do eletrômetro (levando-se em conta os cabos e conexões). C é a capacitância para integração da corrente.

Pode-se mostrar que a variação de tensão na saída do eletrômetro é dada pela relação:

$$V(t) = \frac{A}{1+A} R' I (1 - e^{-t/R'C'}) \quad (1.1)$$

onde:

A = ganho do eletrômetro

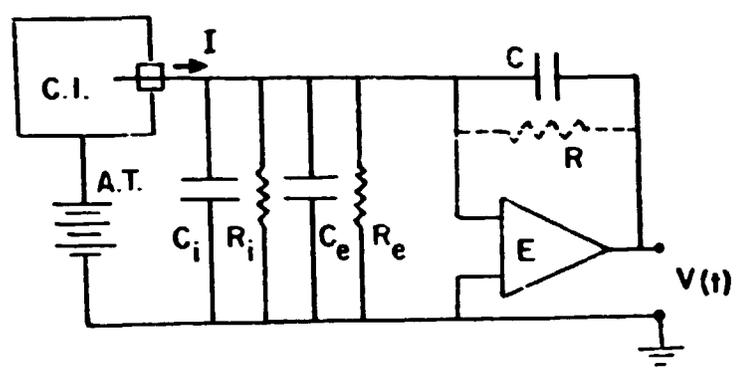


Figura 1.2 - Método da Taxa-de-Deriva

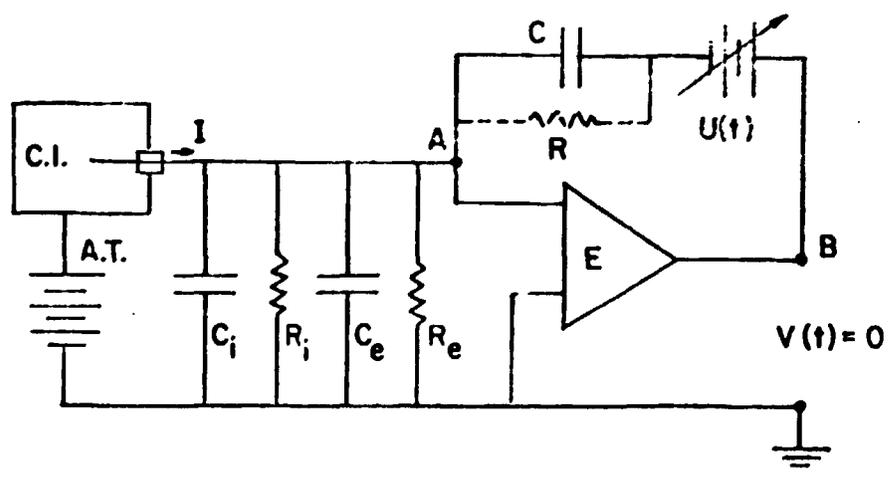


Figura 1.3 - Método de Townsend

R' e C' são a resistência e a capacitância do circuito equivalente e podem ser expressas por:

$$R' = R \left[1 + \frac{1}{1+A} \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_e} \right) \right]^{-1} \quad (1.2)$$

onde;

R = resistência de isolamento do capacitor de integração.

$$e \ C' = C \left[1 + \frac{C_i + C_e}{C(1+A)} \right] \quad (1.3)$$

Expandindo a expressão (1.1), considerando os termos até segunda ordem e lembrando que $A \gg 1$, segue que:

$$V(t) = - \frac{I t}{C} \left(1 - \frac{C_i + C_e}{A C} \right) \left(1 - \frac{t}{2RC} \right) \quad (1.4)$$

Para ganhos elevados ($A \geq 10^4$) e resistência de isolamento do capacitor elevada ($R \geq 10^{16}$ ohms) obtém-se a condição de linearidade:

$$V(t) = - \frac{I t}{C} \quad (1.5)$$

A corrente pode ser determinada através dos valores $V_1 = V(t_1)$ e $V_2 = V(t_2)$, pela expressão:

$$I = C \frac{|V_2 - V_1|}{t_2 - t_1} \quad \text{ou} \quad (1.6)$$

$$I = C \frac{\Delta V}{\Delta t}$$

Esta é a expressão fundamental para a medida de corrente. O valor de C é escolhido pelos valores possíveis que podem assumir I , ΔV e Δt . Para t na faixa de 10 a 1000 seg., ΔV de 1 a 10V e $C = 100$ pF, pode-se medir correntes entre 10^{-13} e 10^{-10} A.

1.3.2 – Método de Townsend de Circuito Balanceado

Neste caso, como mostra a Figura 1.3, a diferença de tensão entre os pontos A e B é mantida igual a zero, variando-se $U(t)$. O eletrômetro tem a função de detectar variações na tensão de saída em relação ao valor zero.

Para este sistema, tem-se que:

$$U(t) = R I (1 - e^{-t/RC}) \quad (1.7)$$

Como no caso anterior, pode-se expandir esta expressão, retirando-se os termos até segunda ordem, obtendo-se:

$$U(t) = \frac{It}{C} \left(1 - \frac{t}{2RC}\right) \quad (1.8)$$

não contendo pois, contribuições das capacitâncias parasitas.

Para $\frac{t}{2RC} \ll 1$, tem-se:

$$I = C \frac{\Delta V}{\Delta t} \quad (1.9)$$

1.3.3 – Comentários sobre os Dois Métodos

Uma inconveniência no método de Townsend é a necessidade de se manter, manual ou automaticamente, nulo o valor da tensão de saída (V), o que demanda um dispositivo de controle extremamente sensível.

No método de Townsend não há contribuição de capacitâncias parasitas, portanto apresenta certa vantagem quando o objetivo é a determinação absoluta da corrente, o que não é o caso do presente trabalho.

O interesse não está no valor absoluto, mas sim no valor relativo da corrente, portanto a contribuição das capacitâncias parasitas no método de "Taxa-de-Deriva" torna-se irrelevante, incorporando-as na capacitância C, considerando a capacitância modificada C*, onde

$$C^* = \frac{1}{\left(1 - \frac{C_i + C_e}{AC}\right)} \quad (1.10)$$

como $C_i + C_e \ll AC$, C* não difere muito de C.

A corrente é então obtida pela expressão:

$$I = C^* \frac{\Delta V}{\Delta t} \quad (1.11)$$

Uma dificuldade no método de "Taxa-de-Deriva" está em descarregar o capacitor de integração, após este ter atingido a tensão V_2 . Para que isso seja feito automaticamente, necessita-se de um dispositivo que não interfira no capacitor de integração quando este está em fase de operação. No caso da utilização de um relé, este deve possuir uma resistência de isolamento em aberto bastante alta ($\geq 10^{13}$ ohms), o que obriga o uso de relés muito especiais ou especialmente construídos para esta finalidade, como é o caso do sistema de Taylor et alii⁽¹⁷⁾.

1.3.4 – Escolha do Método

Optou-se pelo método de TAXA-DE-DERIVA, na medida de corrente, considerando que a restrição apontada no item anterior pode ser contornada, uma vez que em geral apenas alguns ciclos de

integração são necessários para atingir a precisão requerida, o que restringe o tempo de medida a apenas alguns minutos por amostra. Além disso, este método dispensa o dispositivo de compensação do Método de Townsend, o que de certa forma simplifica o arranjo experimental.

1.4 – Sistemas Utilizados por Outros Autores

Os dois métodos citados anteriormente são utilizados em Sistemas de diversos Laboratórios, cada um deles com certas peculiaridades. A seguir são apresentados dois deles, que utilizam o mesmo método de medida de corrente do presente trabalho (Taxa-de-Deriva).

1.4.1 Taylor⁽¹⁷⁾ pertencente ao Chalk River Nucl. Lab. (AECL) descreve um sistema que utiliza o método de Taxa-de-Deriva com intervalo de tempo de integração prefixado (Figura 1.4).

Inicialmente a entrada é mantida no potencial do terminal de realimentação do eletrômetro (ao invés de estar a um potencial de terra). A Câmara de ionização é ligada ao sistema por meio de uma chave (relé) durante o tempo selecionado pelo cronômetro (CR). Ao término deste tempo a chave é desligada e, simultaneamente, é lida a tensão nos terminais do ECV (Mod. Gary da A.P.C.) por um voltímetro diferente (VD).

A dificuldade do método reside na obtenção do relé, que deve ser de alta resistência contra fugas e mínima capacitância. Para este sistema foi construído um relé especial com isolantes de Teflon. Os capacitores de integração são do tipo TCC "Plastapack" Tipo CPL93 que possuem um filme dielétrico de poliestireno e são selados hermeticamente com conectores de Teflon.

1.4.2 Ghiho⁽¹⁰⁾ pertencente ao LMRI (Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants) de Saclay Descreve um sistema utilizando o método de Taxa-de-Deriva com tempo prefixado (Figura 1.5). O sistema está associado a câmaras de ionização de cavidade ou a ar livre para medida de exposição.

Aqui há a necessidade de sensibilidade alta e o sistema é projetado para medir correntes de até 10^{-16} A. O sistema é automatizado na aquisição e na transferência dos dados e permite a correção para a influência de parâmetros atmosféricos através de sondas acopladas ao sistema. Esta correção é feita a partir da medida dos valores de temperatura (T), pressão (P) e umidade (U); fatores importantes, particularmente quando se trabalha com câmaras de ionização ao ar livre.

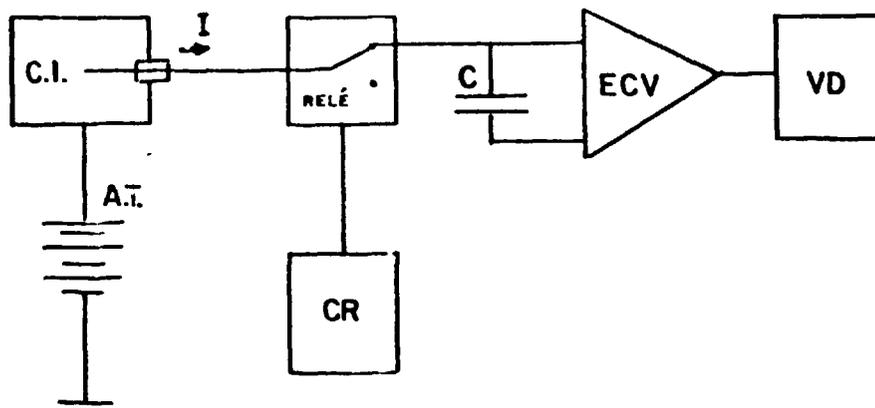
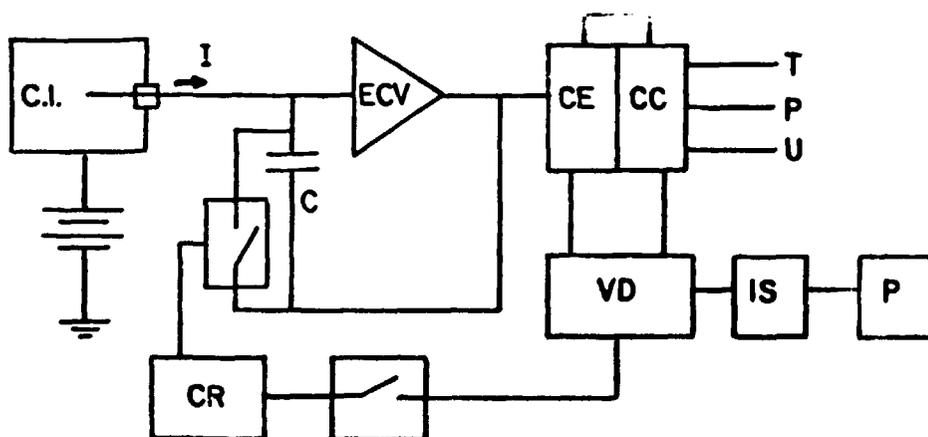


Figura 1.4 – Sistema de Taylor et alii



CE: Comando de entradas
 CC: Comando de comutação
 IS: Interface de saída
 P : Perfuradora

Figura 1.5 – Sistema de Ghilho et alii

CAPÍTULO 2

DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE CÂMARA DE IONIZAÇÃO

2.1 – Princípios de Operação do Sistema

O método utilizado é o de taxa-de-deriva com níveis de tensão prefixados. Um esquema geral do Sistema é visto na Figura 2.1.

A corrente proveniente da Câmara de Ionização (C.I.) carrega o capacitor de integração (C), localizado no circuito de realimentação do Eletrometro (E). No instante de tempo t_1 , quando a tensão nos terminais do capacitor atinge o valor V_1 , prefixado pelo discriminador D1, a Interface (IF) aciona o cronômetro (CD) e, simultaneamente, transfere os dados do Voltmetro Digital (VD) e do Relógio Digital (RD) para a impressora (I), a qual registre o valor da tensão V_1 e do t_1 (calibrado na hora certa do dia).

No instante de tempo t_2 , quando a tensão atinge o valor V_2 , prefixado por D2, o cronômetro é desligado e são impressos os valores do intervalo de tempo de integração (Δt) e de V_2 .

Como foi visto (Equação 1.6) a corrente é dada por

$$I = C \frac{V_2 - V_1}{\Delta t}$$

Em virtude de se tratar de medidas relativas, não é necessário o conhecimento preciso do valor de C.

2.2 – Componentes do Sistema

2.2.1 – Câmara de Ionização Utilizada

Foi utilizada uma Câmara de Ionização de Poço de 20th Century Electronics Ltd. Mod. IG12/A20 com as seguintes especificações:

a) Características Mecânicas:

- Diâmetro máximo: 18,42 cm ($7\frac{1}{4}$ ”).
- Comprimento máximo (sem incluir terminais): 42,7 cm (16,8”).
- Profundidade do Poço: 31,90 cm (12,56”).
- Diâmetro interno do Poço: 5,08 cm (2”).

b) Materiais Estruturais e Gás:

- Corpo: aço inoxidável.
- Eletrodos: Alumínio.

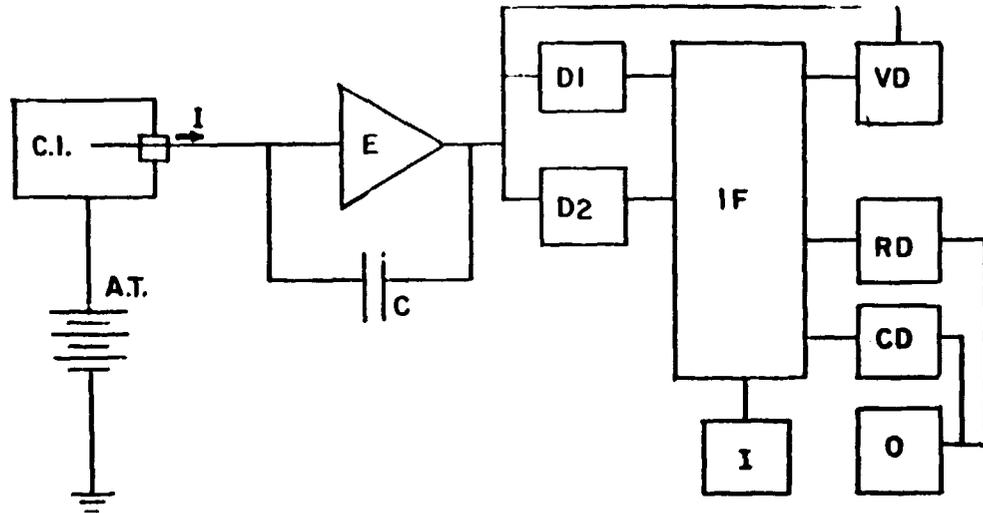


Figura 2.1 - Sistema de Câmara de Ionização do Presente Trabalho

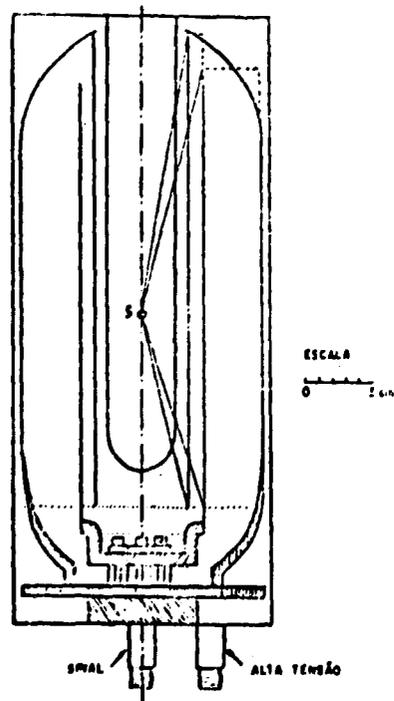


Figura 2.2 - Câmara de Ionização do Presente Trabalho (IG 12/A20)

- Isolação: Alumina.
- Gás do volume sensível: Argônio, à pressão de 20 Atmosferas.

c) Características Operacionais:

- Impedância da Saída de Sinal: $> 10^{14} \Omega$.
- Impedância do Eletrodo de Alta Tensão $> 10^{10} \Omega$.
- Faixa de tensão de operação: 200 – 1200 Volts.
- Sensibilidade gama: $1,44 \times 10^{-8}$ Ampere por Roentgen/hora.
- Faixa de fluxo gama: 10^{-4} a 1 Roentgen/hora.

A Figura 2.2 mostra as características geométricas internas da Câmara de Ionização, obtidas através de diversas gamagrafias, feitas em diferentes ângulos, para se ter uma visão global do detector. Na parte central do detector está indicada a fonte radioativa (S) e são traçadas linhas a partir da fonte que indicam aproximadamente a delimitação do volume sensível do detector.

2.2.2 – Eletrômetro

Foi utilizado o Eletrômetro Mod 610C da Keithley Instruments Inc. com as seguintes características:

- Impedância de Entrada $> 10^{14}$ ohms
- Deriva do Zero $< 1\text{mV/dia}$, $< 150\mu\text{V}/^\circ\text{C}$.
- Ruído $< 5 \times 10^{-15}$ A ("root mean square").

Em sistemas de câmara de ionização, geralmente são utilizados Eletrômetros de Capacitor Vibrante, pois possuem melhores características. Entretanto, o tipo de Eletrômetro (Mod. 610C) usado no presente trabalho pode ser considerado um substituto razoável, como poderá ser visto mais adiante ao serem examinadas a linearidade, estabilidade e consistência da calibração. Mas certas precauções foram tomadas, principalmente com relação à sua estabilidade e linearidade através do emprego de um Monitor de meia-vida longa e bem conhecida (^{60}Co).

As medidas foram feitas utilizando-se o Eletrômetro como Integrador de Corrente. A integração foi feita por um capacitor localizado no circuito de realimentação do Eletrômetro.

O fundo de escala da tensão de saída do eletrômetro é 3 Volts, mas constatou-se que a tensão varia linearmente até acima de 10 volts, o que possibilitou uma melhor utilização dos discriminadores, projetados para tensões de 0 a 10 Volts. Pequenos desvios da linearidade com o nível de discriminação foram corrigidos pelo uso do Monitor. Pela dificuldade em se conseguir um dispositivo especial para descarga automática do capacitor de integração, este trabalho foi efetuado manualmente, através do botão "ZERO CHECK" do painel do Eletrômetro 610C.

A escala utilizada para a maioria das medidas foi $1 \times 10^{-9}\text{C}$. Para medidas de corrente de fundo e fontes de baixa atividade, utilizou-se a escala de $1 \times 10^{-10}\text{C}$. O valor da capacitância de integração em cada caso foi $1 \times 10^{-9}\text{F}$ e $1 \times 10^{-10}\text{F}$, respectivamente.

A escala máxima para medidas de integração de corrente é 1×10^{-7} C.

A correção para linearidade em diferentes escalas também foi feita utilizando o Monitor.

Para evitar efeitos espúrios indesejáveis, causados por movimentos ou vibrações no cabo de sinal entre a Câmara de Ionização e o Eletrômetro, foi feita a substituição do conector de sinal do detetor por um do tipo UHF, compatível com o Eletrômetro. Por meio de um suporte especial, mostrado na Figura 3.4, o Eletrômetro foi acoplado diretamente na parte inferior da Câmara. O acoplamento não impossibilitou o acesso aos vários controles do painel do eletrômetro, colocados próximos ao conector de entrada.

2.2.3 – Fonte de Alta Tensão. FLUKE Mod. 415B

Características:

- Estabilidade: 0,01% por dia.
- Resolução: 5 mV.
- Exatidão na tensão de saída 0,25%.
- Ruído máximo ("Ripple, Root Mean Square"): $100 \mu\text{V}$.

Alguns autores utilizam baterias em lugar de fontes eletrônicas para diminuir o ruído eletrônico. Foram feitas medidas, substituindo a fonte de tensão FLUKE, por baterias blindadas, operando ambos a uma tensão de 25 V (abaixo do valor de operação) e não notou-se variação sensível no ruído que pode ser atribuído em sua maior parte como originário no circuito de interface do sistema (IF). O ruído foi convenientemente eliminado pela elevação do nível de tensão do discriminador inferior (vide item (2.2.4.a)).

2.2.4 – Módulo de Controle e Transferência de Dados

Este módulo foi projetado e construído pela CIEN (Coordenadoria de Instrumentação Eletrônica) do IEA e compreende os dois Discriminadores (D1 e D2), a interface (IF), o Relógio e Cronômetro Digitais (RD e CD) associados ao Oscilador comum (O).

a) Discriminadores

Empregou-se dois discriminadores, sendo um para controlar o nível inferior de tensão do Eletrômetro (D1) e o outro para o nível superior (D2).

Ambos operam na faixa de 0 a 10 Volts., sendo controlados por dois potenciômetros, com divisões de 0,02 volts, aproximadamente. O valor de tensão indicado (nominal) é ligeiramente diferente do valor real. Por conveniência prática, adotou-se como referência os valores nominais de tensão, pois isto permite ao operador a reprodutibilidade mais rápida das condições de discriminação. Os níveis adotados para as medidas foram os seguintes:

- (i) 0,8 Volt (Valor nominal), para o Nível Inferior de discriminação, limitado inferiormente pelo ruído eletrônico. Este ruído provoca comportamento errático da impressora e o seu valor é maior para valores pequenos de $\frac{\Delta V}{\Delta t}$. O valor 0,8 escolhido, foi para o valor mínimo de $\frac{\Delta V}{\Delta t}$ utilizado, da ordem de 1×10^{-3} Volts/seg.

- (ii) 7,0 Volts (Valor nominal), para o Nível Superior de discriminação. Este valor foi escolhido arbitrariamente, de modo a evitar possíveis sobrecargas no circuito de interface que podem sobrevir quando a tensão na saída do eletrômetro ultrapassa a 10 Volts, isto porque a descarga do capacitor não é automática mas sim feita manualmente. Com um sistema totalmente automático, este problema não ocorreria e poderia ser utilizado o valor máximo (10 Volts, valor nominal).
- (iii) 2,0 Volts (Valor nominal), para o nível superior de discriminação, nas medidas de baixas correntes (corrente de fundo e fontes pouco ativas).

b) Interface

É o circuito que controla as operações de acionamento e interrupção do cronômetro e impressões sincronizadas dos pares (V_1, t_1) e $(V_2, \Delta t)$. Desse modo é automatizada a coleta de dados em uma integração. O início de nova integração, é comandado manualmente, como já foi mencionado.

No futuro será tentada a aquisição de um relé especial de alta impedância $\geq 10^{13}$ ohms, que permitirá a operação automática do sistema.

c) Relógio Digital

Capacidade 24 horas. Indicação de horas, minutos e segundos. Seu erro sistemático foi medido, comparando-o com um Timer Philips Mod. 4261 em um intervalo de medida de ~ 40 horas resultando em um desvio de $(+0,023 \pm 0,001)\%$ (o desvio indicado foi estimado considerando a incerteza de leitura da ordem de ≤ 2 seg.).

Após um reajuste do oscilador, este erro foi levado a níveis inferiores a 0,001%.

d) Cronômetro Digital, características.

– Δt máximo: 10^5 seg. (podendo ser feita a leitura até 10^{-3} seg.).

Seu erro sistemático é estimado como sendo menor ou igual ao do Relógio.

e) Oscilador: características

Freqüência: 100 KHz.

Varição com a temperatura: -1,2 partes em 10^6 por $^{\circ}\text{C}$, na faixa de 10 a 70°C .

Através de medida com um Freqüencímetro (HP Mod. 5302A) acoplado a um "Time Mark Generator". (Tektronix 2901) foi verificado que a exatidão na freqüência é ≤ 1 Hz.

2.2.5 – Voltímetro Digital: Hewlett Packard Mod. 34701A.

Características:

- Resolução 5 dígitos.
- Precisão: 0,03% da leitura além de 0,01% do valor do fundo de escala.
- Estabilidade 0,01% por dia.

- Coeficiente térmico: 0,002% por °C.
- Impedância de Entrada 10 MΩ.

O voltímetro está acoplado a um Módulo BCD Hewlett Packard Mod. 34721A, com saída para impressora, e a um Módulo Display Hewlett Packard Mod. 34701A. O fundo de escala utilizado foi 10 Volts.

2.2.6 – Impressora Digital: Hewlett Packard Mod. 5055A.

Ritmo de impressão até 10 linhas/seg.

- Ordem de Impressão:
- 1) Hora da Medida.
 - 2) Nível inferior de Tensão.
 - 3) Intervalo de tempo de integração.
 - 4) Nível superior de tensão.

2.3 – Critérios Adotados para a Calibração do Sistema

2.3.1 – Método de Padronização das Soluções Radioativas em Atividade Específica

A padronização das soluções radioativas foi feita em um Sistema de Coincidências $4\pi (\beta, X) - \gamma$, instalado no Laboratório de Metrologia Nuclear (L.M.N.) do I.E.A.

No APÊNDICE é feita uma descrição sucinta do Método de Coincidências $4\pi (\beta, X) - \gamma$ onde é apresentado o sistema instalado no L.M.N.

São apresentadas as características mais importantes do método tais como: preparação de fontes, fórmulas para o cálculo da atividade específica e determinação de erros. Um ítem a parte é dedicado à medida da atividade específica de emissores beta puros utilizados na curva de eficiência relativa do Sistema de Câmara de Ionização " $4\pi - \gamma$ ".

No capítulo seguinte, ítem 3.3, serão apresentados os resultados das medidas absolutas, juntamente com as medidas efetuadas no Sistema de Câmara de Ionização.

2.3.2 – Método de Medida para o Sistema de Câmara de Ionização

O sistema de medidas foi colocado em sala separada, mantida a $21 \pm 1^\circ\text{C}$. A umidade relativa esteve na faixa de $65 \pm 5\%$ aproximadamente.

A seguir serão descritos os critérios adotados na seleção, preenchimento e selagem das ampolas; os tipos de suportes de ampolas utilizadas na calibração; as fórmulas para o cálculo de $\Delta V/\Delta t$ para as fontes e corrente de fundo; a determinação do Fator de calibração e finalmente a Atividade pelas curvas de Eficiência Gama e Beta.

a) Seleção das Ampolas

As ampolas utilizadas são do tipo padrão adotado pelo B.I.P.M. (Bureau International des Poids

et Mesures). Um esquema da ampola está apresentado na Figura 2.3. As ampolas possuem as seguintes características:

- material: vidro comum.
- diâmetro externo: 16,4 mm.
- espessura de parede 0,65 mm.
- capacidade total: 5 ml.

Por uma amostragem de 7 ampolas, constatou-se uma variação de $\pm 0,1$ mm no diâmetro e $\leq \pm 0,05$ mm na espessura da parede. Destes dois fatores, o mais crítico é a espessura da parede, por causa da atenuação de gamas de baixa energia. Segundo o BIPM⁽⁴⁾, uma variação de 0,1 mm nesta espessura acarreta uma variação de sensibilidade na Câmara de $\pm 0,12\%$ para uma energia baixa, tal como 59 KeV (^{241}Am). Deste modo pode-se inferir que a variação esperada em nosso caso é $\leq 0,06\%$ para os casos mais críticos de baixa energia.

A variação de $\pm 0,1$ mm no diâmetro afeta apenas o posicionamento da ampola no suporte e está incluindo na incerteza total de $\pm 0,3$ mm, que acarreta um erro $< 0,03\%$ (vide item 2.1.4).

b) Preparação e Selagem das Ampolas.

Após uma lavagem com solução sulfocrômica e secagem em estufa, a ampola é preenchida com a solução radioativa de interesse, em um ambiente especial (sala de pesagens) que possui temperatura e pressão controladas.

A pesagem foi feita em balança Mettler M5-SA com sensibilidade de $1\mu\text{g}$, pelo método do picnômetro, seguindo as normas prescritas pelo BIPM⁽⁴⁾.

As ampolas foram preenchidas até uma altura de 20 ± 1 mm, correspondendo a um volume de $\sim 3,5$ ml. Esta variação de altura (± 1 mm) acarreta uma variação estimada em $\leq 0,01\%$ na resposta da câmara (vide item 3.1.4).

No caso de não se possuir volume suficiente de solução ativa este é complementado com solução inativa.

Após o preenchimento, as ampolas são seladas em chama de gás orgânico e oxigênio para evitar a evaporação. A selagem é feita em tempo suficientemente curto para que a evaporação seja desprezível durante o processo.

c) Suportes de Ampolas para a Medida na Câmara de Ionização.

O suporte de ampolas utilizado nas medidas foi feito de Lucite, com 2,0 mm, de espessura de parede (Figura 2.3).

A tolerância admitida na reprodutibilidade de posição da ampola em relação a direção transversal é $\pm 0,3$ mm e em relação ao posicionamento vertical $\pm 0,5$ mm. A variação global de resposta para esta tolerância é estimada em $< 0,06\%$ (a ser visto no item 3.1.4).

Segundo o trabalho de Taylor⁽¹⁸⁾ é conveniente a utilização de um suporte com um revestimento de Cádmio, para efetuar a absorção de Raios X provenientes de núclídeos que decaem por Captura de elétrons ou por conversão interna. O cádmio possui uma ressonância na seção de choque de

absorção em 26,711 KeV⁽²⁵⁾, que corresponde à transição eletrônica da Camada K. Por este motivo repetiu-se todas as medidas, revestindo-se o suporte de Lucite externamente com 0,7 mm de Cádmi, como mostra a Figura 2.3. O revestimento sendo externo ao Lucite diminui a radiação de "Bremstrahlung" que é produzida essencialmente na solução, no vidro da ampola e no lucite do suporte, que são materiais de baixo número atômico.

A efetividade do revestimento foi verificada com o ²⁴¹Am (59,5 KeV), cujo fator de atenuação no Cádmi foi 15,9. Para o ⁶⁰Co, este fator foi 1,01 (1%).

Outra vantagem na modificação do suporte é fornecer outra curva de calibração, parcialmente independente da anterior, o que torna possível a verificação da consistência dos resultados.

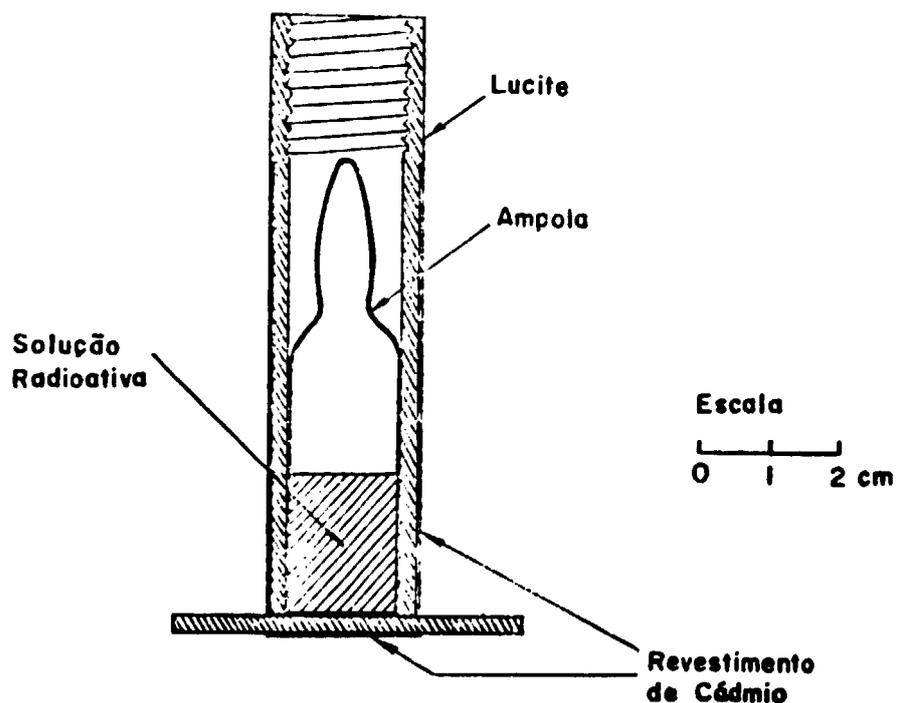


Figura 2.3 – Esquema da Ampola e Suporte para as Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

d) Cálculo do Fator de Corrente Relativa $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$

Como foi visto no item 2.2.6, pode-se ler de impressão os valores de V_1 , V_2 , Δt e da hora de medida (definindo: h = hora, m = minuto, s = segundo).

A partir destes valores é calculado $\frac{\Delta V}{\Delta t}$ médio entre as várias medidas:

$$\langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle = \frac{\sum_{i=1}^n [(\frac{\Delta V}{\Delta t})_i - B] e^{-\lambda t_i}}{n} = \frac{\sum_{i=1}^n V_i}{n} \quad (2.1)$$

onde:

$$\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_i = \frac{\Delta V}{\Delta t} \text{ para cada medida} = (V_2 - V_1)/\Delta t$$

$$B = \frac{\Delta V}{\Delta t} \text{ médio para a radiação de fundo}$$

λ = constante de decaimento do radionuclídeo considerado (d^{-1})

t_i = tempo entre a hora da medida e a data de referência, dada por:

$$t_i = \left[\left(\frac{\Delta t_i}{2} + S_i\right)/3600 + m_i/60 + h_i \right] / 24 + d \text{ (dias)}$$

onde:

d = intervalo de tempo (em dias) entre as 0.00 horas do dia da medida e a data de referência.

n = número de medidas para a amostra.

O desvio padrão da média $\langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle$ foi calculado por:

$$\sigma = \left\{ \frac{\sum_{i=1}^n \left[V_i - \langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle \right]^2}{n(n-1)} \right\}^{1/2} \quad (2.3)$$

Previamente ao cálculo de $\langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle$ para a amostra, determinou-se B , para as medidas de radiação de fundo, de modo análogo, considerando apenas:

$$B = \frac{\sum_{i=1}^m \left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_i}{m} \quad \text{e} \quad \sigma_B = \left\{ \frac{\sum_{i=1}^m \left[\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_i - B \right]^2}{m(m-1)} \right\}^{1/2} \quad (2.4)$$

Como indicado nas expressões, tratou-se cada medida separadamente para a correção de decaimento, de maneira a se levar em conta o decaimento durante medidas consecutivas. O fato de considerar a hora média no cálculo de t_i , torna desprezível o decaimento durante uma única medida, para os Δt e λ envolvidos. Para $\Delta t = 1000$ seg. e $T_{1/2} = \frac{9n2}{\lambda} = 12$ horas, o erro é de ordem de 0,01%.

- Incertezas Sistemáticas em $\langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle$

Para evitar uma incerteza sistemática na subtração da radiação de fundo, procurou-se sempre manter (eqs. 2.3 e 2.4) $\sigma_B \ll \sigma$.

A incerteza sistemática em $\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_i$ foi estimada em 0,02% sendo originária essencialmente pela medida de Δt_i .

Considerando que os t_i são aproximadamente iguais em medidas consecutivas, o erro por causa da incerteza em λ , pode ser estimado por:

$$\sigma = \frac{\partial e^{-\lambda t_i}}{\partial \lambda} \sigma_\lambda \rightarrow \sigma (\%) = \lambda t_i \sigma_\lambda (\%) \quad (2.5)$$

Esta é a incerteza sistemática que predominou na determinação de $\langle \frac{\Delta V}{\Delta t} \rangle$ na maioria dos casos.

e) Determinação do Fator de Calibração (F).

O Fator de Calibração (F) é usado na determinação DIRETA da Atividade de uma solução radioativa. Neste caso, compara-se a resposta da Câmara de Ionização com a resposta obtida para outra solução (do mesmo radionuclídeo) padronizada no Sistema Absoluto.

O Fator de Calibração (F) é dado por:

$$F = f_N \frac{\langle \Delta V / \Delta t \rangle}{q A m} \quad (2.6)$$

onde,

f_N = fator de normalização, obtido pela medida do Monitor (^{60}Co). Este fator é descrito no item 3.2.3 (equação 3.2).

$\langle \Delta V / \Delta t \rangle$ = Fator de corrente relativa, descrito no item anterior (2.3.2.d).

A = Atividade específica da solução obtida pelo método absoluto 4π -(α, β) ou 4π -(β, X, e_A)- γ . (item 2.3.1).

m = massa da amostra.

A incerteza percentual em F (σ_F %) é obtida da relação:

$$\sigma_F (\%) = \{ \sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2 + \sigma_4^2 \}^{1/2} \quad (2.7)$$

onde σ_1 , σ_2 , σ_3 e σ_4 são respectivamente os erros percentuais em f_N , $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$, A e m.

A atividade desconhecida (A_x) de uma outra solução é dada por:

$$A_x = \frac{(f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle)_x}{F} \quad (2.8)$$

Esse método que utiliza o fator de calibração é o mais preciso para determinações de Atividade pelo Sistema de Câmara de Ionização.

f) Determinação da Atividade pelas Curvas de Eficiência Relativa Gama e Beta.

Este método se aplica para radionuclídeos que não tinham sido previamente padronizados pelo Sistema Absoluto. Neste caso são utilizadas as curvas de Eficiência Relativa Gama (ϵ_γ) e Beta (ϵ_β).

Estas curvas são determinadas no Capítulo 4, a partir dos dados experimentais apresentados no Capítulo 3, Item 3.3. A Atividade desconhecida é dada pela relação:

$$A_x = \frac{(f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle)_x}{\sum_{i=1}^n (\epsilon_\gamma I_\gamma)_i + \sum_{j=1}^n (\epsilon_\beta I_\beta)_j} \quad (2.9)$$

onde:

$(\epsilon_\gamma)_i$ e $(I_\gamma)_i$ são a eficiência relativa gama e intensidade absoluta para a i-ésima transição gama.

$(\epsilon_\beta)_j$ e $(I_\beta)_j$ são a eficiência relativa beta e intensidade absoluta para j-ésima transição beta.

Os valores de $(I_\gamma)_i$ e $(I_\beta)_j$ são apresentados no Capítulo 3.

CAPÍTULO 3

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo serão abordados pormenorizadamente, os resultados experimentais obtidos com o propósito de determinar as características de desempenho da Câmara de Ionização utilizada, tais como: tensão de operação, sensibilidade, corrente de fundo, etc. Em seguida, são apresentados os resultados das medidas feitas com a Solução-Monitor (^{60}Co).

Finalmente, são apresentados os resultados obtidos nas medidas de Atividade Absoluta das soluções radioativas para os diversos radionuclídeos padronizados, juntamente com os resultados das medidas destas soluções no Sistema de Câmara de Ionização.

3.1 – Desempenho da Câmara de Ionização $4\pi\gamma$

3.1.1 – Determinação da Tensão de Operação

De acordo com a folha de instruções, a Câmara de Ionização utilizada (tipo IG 12/A20) satura em tensões acima de 200 Volts para correntes até $1,44 \times 10^{-8}$ A (7,0mCi de ^{60}Co). A curva característica do detector é apresentada na Figura 3.1. Nesta figura, $V' = \langle \Delta V / \Delta t \rangle$. As barras de erro correspondem ao desvio padrão da média para cada ponto. Esta curva foi obtida utilizando uma fonte de ^{137}Cs com uma atividade de 304 μCi .

Foi feito um ajuste de reta por mínimos quadrados na faixa de 200 – 1000 Volts e obteve-se uma inclinação de 0,094% por 100 Volts. Esta inclinação pode ser atribuída a uma pequena expansão do volume sensível do detector nas regiões de baixo campo elétrico⁽¹⁷⁾.

A estabilidade da fonte de Alta Tensão é da ordem de 0,01% por dia, o que corresponde a uma variação de apenas $5 \times 10^{-5}\%$ por dia no valor de corrente.

3.1.2 – Sensibilidade

A sensibilidade da Câmara de Ionização é $2,06 \times 10^{-12}$ A/ μCi de ^{60}Co , medida diretamente pelo Eletrometro Keithley 610c. A resposta do sistema quando medida pelo terminal de saída do Eletrometro é $6,17 \times 10^{-3}$ V/seg por μCi de ^{60}Co . Como o fundo de escala para 1×10^{-9} C é 3 Volts, a tensão de saída do eletrometro é multiplicada por 3 em relação à tensão nos terminais do capacitor de integração. Levando-se este aspecto em consideração, e lembrando que $I = \frac{C\Delta V}{\Delta t}$, conclui-se que a capacitância real do sistema está próxima do valor nominal, 1×10^{-9} F.

3.1.3 – Corrente de Fundo

A Figura 3.2 mostra a variação da Corrente de Fundo, para o detector desprovido de blindagem, durante dias consecutivos.

A média das medidas resultou:

$$(1,11 \pm 0,11) \times 10^{-3} \text{ V/seg} \quad (\text{o desvio indicado é } 3\sigma, \text{ onde } \sigma = \text{desvio padrão de uma medida})$$

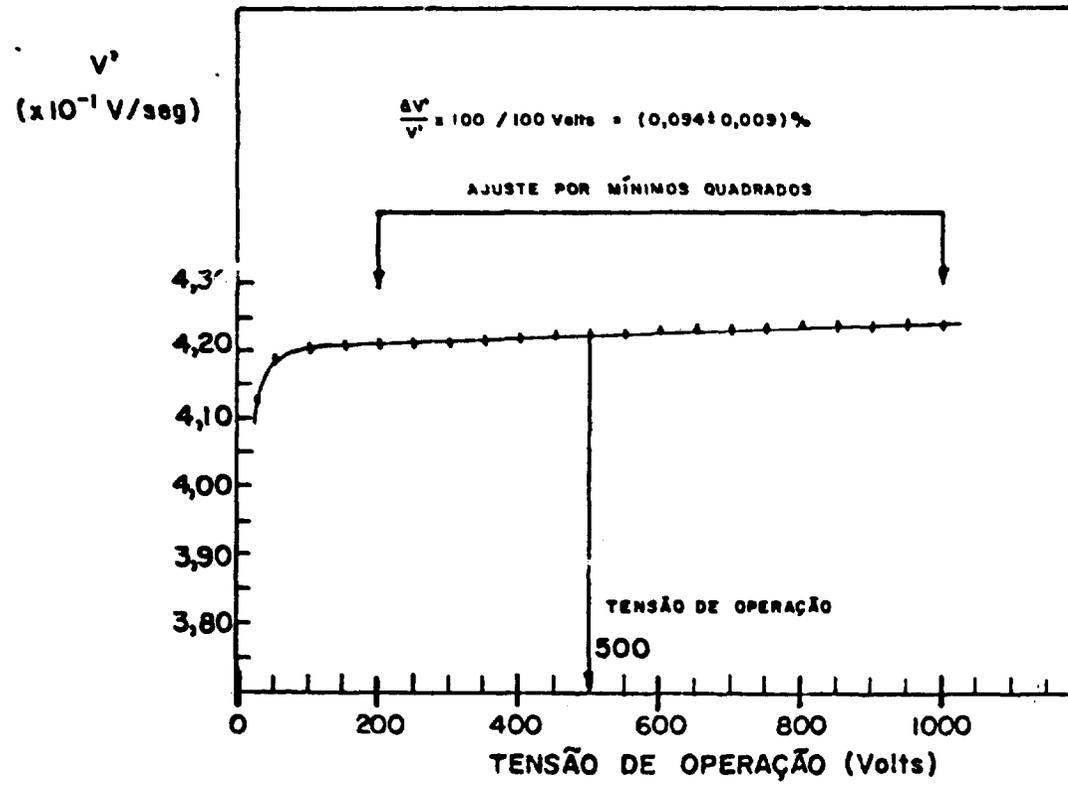


Figura 3.1 - Curva Característica da Câmara de Ionização IG 12/A20-20th Century Electronics

$$\text{ou } (3,70 \pm 0,37) \times 10^{-13} \text{ A}$$

correspondendo a

$$(0,180 \pm 0,018) \mu\text{Ci de } {}^{60}\text{Co}$$

A Figura 3.3 mostra a variação da corrente de fundo após envolver a Câmara de Ionização em uma blindagem com 4,5 cm de chumbo.

O conjunto Câmara – Blindagem – Eletrômetro é apresentado na Figura 3.4.

Neste caso, a média resultou:

$$(2,98 \pm 0,10) \times 10^{-4} \text{ V/seg}(3\sigma)$$

ou

$$(9,93 \pm 0,33) \times 10^{-14} \text{ A}$$

correspondendo a:

$$(0,0482 \pm 0,0016) \mu\text{Ci de } {}^{60}\text{Co}$$

Quando a blindagem é utilizada, nota-se uma diminuição na corrente de fundo por um fator de 3,7. Se considerarmos apenas a flutuação da corrente devido à estatística da radiação, conclui-se que será necessário apenas metade do tempo de medida, para se atingir a mesma precisão da medida feita sem a blindagem.

A flutuação da corrente de fundo em torno da média foi $0,11 \times 10^{-3}$ V/seg sem blindagem e $0,10 \times 10^{-4}$ V/seg com a blindagem, mostrando uma diferença por um fator de ~ 10 . Isto faz com que seja necessário um controle maior da corrente de fundo sem a blindagem, em virtude de sua variação mais acentuada com o tempo.

A inclusão de blindagem acarreta um ligeiro aumento de corrente na medida de uma fonte radioativa, isto porque ocorre retroespalhamento no chumbo dos gamas emitidos pela fonte. Este retroespalhamento varia com a energia, porém já será englobado nas curvas de calibração para eficiência relativa do sistema.

Procurou-se diminuir o retroespalhamento, afastando-se a face interna da blindagem em relação à fonte. A distância entre fonte e blindagem foi da ordem de 18 cm. Não se aumentou ainda mais essa distância, para não prejudicar o acesso ao painel do Eletrômetro.

O aumento da corrente em virtude do retroespalhamento foi de +0,12% para a energia de 1,25 MeV (${}^{60}\text{Co}$) e +0,47% para 0,411 MeV (${}^{198}\text{Au}$).

Para atenuar o Raio-X induzido no chumbo da blindagem, foi feito um revestimento na face interna com materiais de número atômico crescente (0,5 mm de Alumínio e 0,7 mm de Cobre)⁽²⁶⁾.

Outro aspecto importante é a variação da corrente de fundo devido a fontes externas, que é diminuída com a inclusão da blindagem.

Foi feita uma medida, colocando-se uma fonte de 93 μCi de ${}^{60}\text{Co}$ a 1 metro da blindagem e verificou-se uma variação na corrente de fundo em apenas 40%, correspondendo a 0,02 μCi de ${}^{60}\text{Co}$. Sem a blindagem a variação corresponde a 0,4 μCi de ${}^{60}\text{Co}$.

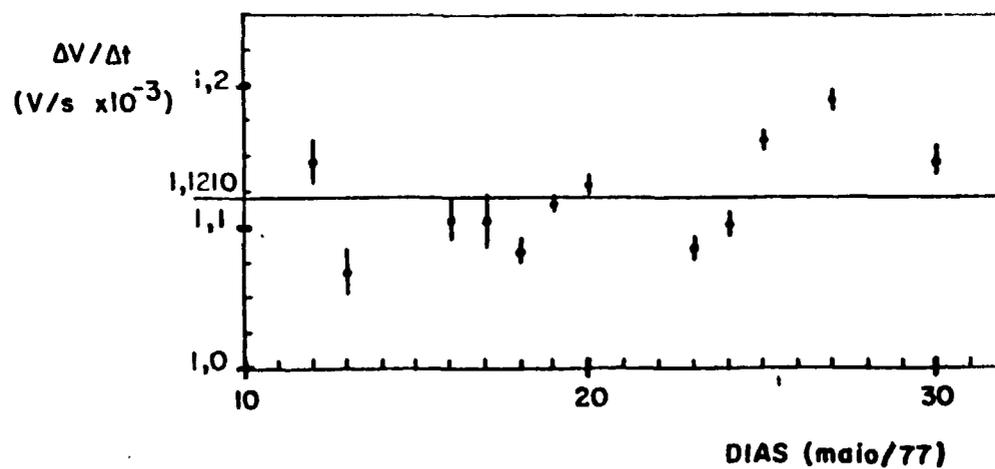


Figura 3.2 - Variação da Corrente de Fundo - Detector Desprovido de Blindagem

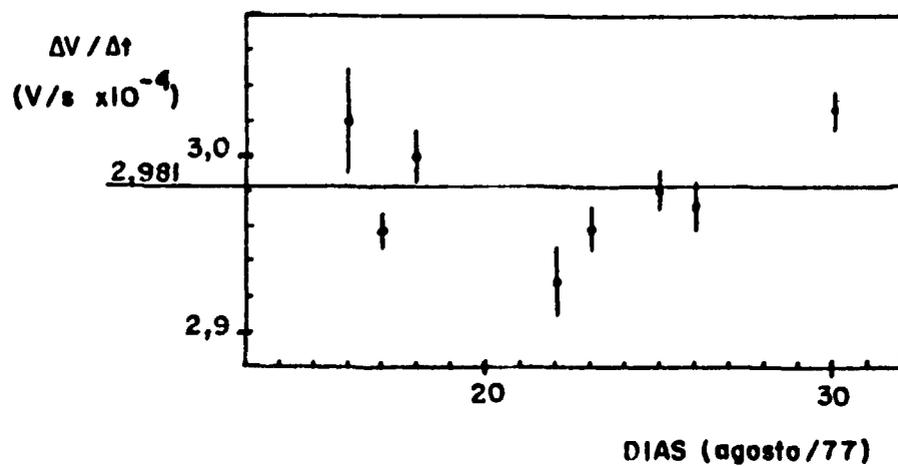


Figura 3.3 - Variação da Corrente de Fundo - Detector Blindado com 4,5 cm de Chumbo

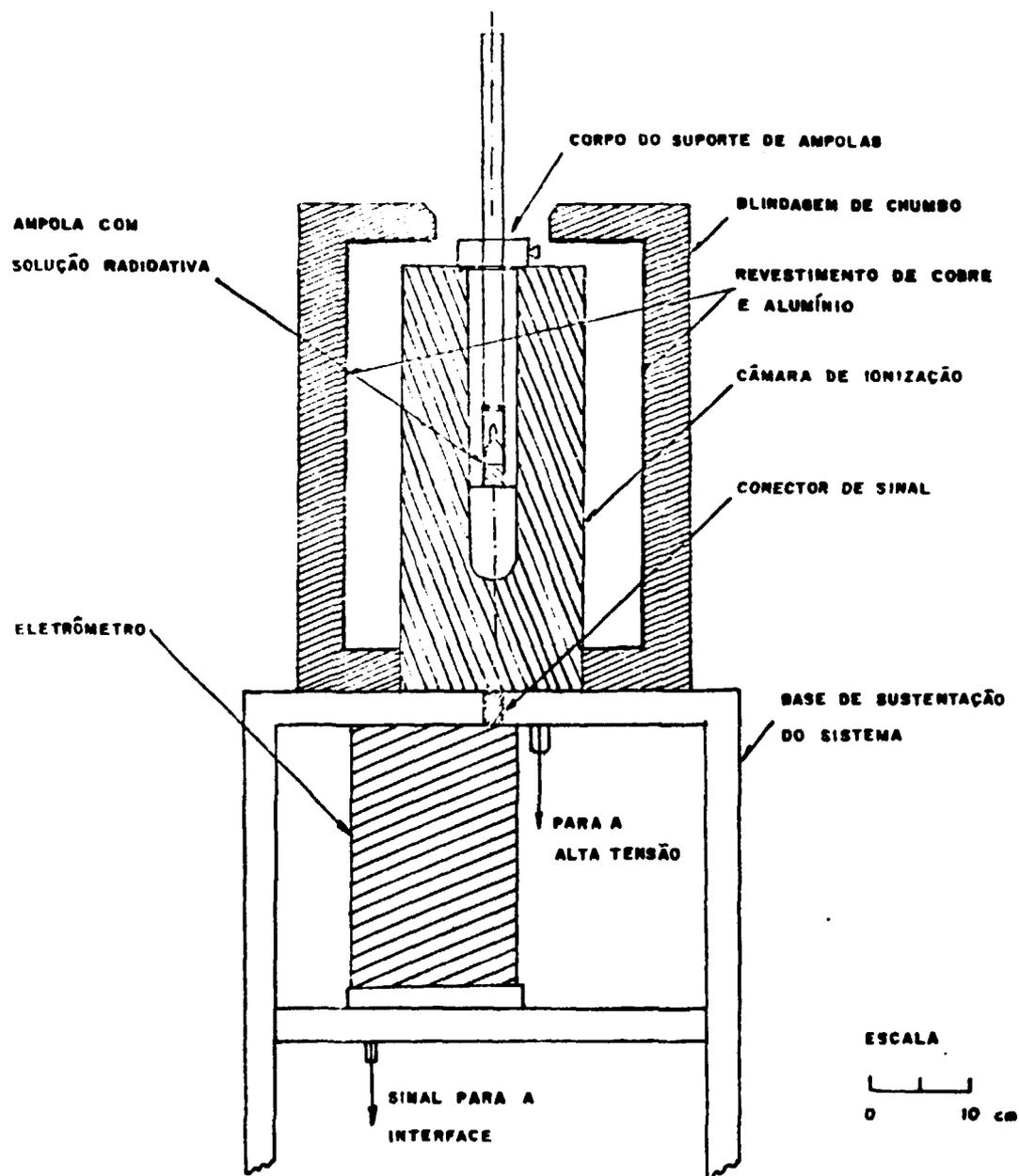


Figura 3.4 – Conjunto para Medida do Sistema de Câmara de Ionização

Embora o uso de blindagem seja vantajoso, principalmente na medida de fontes de baixa atividade, foi possível a calibração do Sistema mesmo sem a blindagem em torno do detector. Os resultados obtidos nesta condição, fornecem informações sobre a variação do fator de retroespalhamento em função da energia. Além disso servem também como testes de consistência em relação aos resultados obtidos com blindagem.

3.1.4 – Variação de Resposta em Função da Posição da Fonte

A Figura 3.5 mostra os resultados obtidos variando-se a posição da ampola ao longo da direção da vertical. As medidas foram feitas com o dispositivo esquematizado na Figura 3.7, que permitiu o posicionamento da amostra com precisão da ordem de $\pm 0,5$ mm, ao longo do eixo vertical do detector. Da figura vê-se que a posição da amostra que apresenta a mais alta resposta é com menor variação está cerca de 21 cm abaixo do topo do poço da Câmara (em relação ao centro da amostra). A resposta da câmara é relativamente pouco sensível a pequenas mudanças de posição em torno deste ponto, cerca de 0,060% por cm, entretanto para reprodutibilidades melhores que 0,03% é necessário que a amostra seja colocada na mesma posição com precisão da ordem de 5 mm.

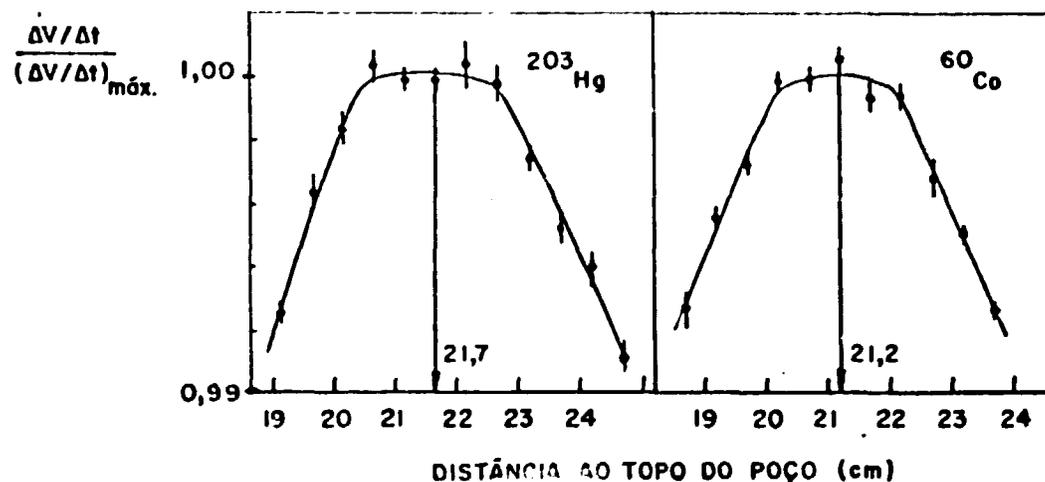


Figura 3.5 – Variação de Resposta, Deslocando a Ampola ao Longo do Eixo Vertical – ^{203}Hg (279 KeV) e ^{60}Co (1,25 MeV)

A posição de máximo varia ligeiramente com a energia gama; é cerca de 0,5 cm mais alta para o ^{60}Co (1,25 MeV), quando comparado com o ^{203}Hg (0,279 MeV).

Os fatores de calibração foram determinados em geometria fixa, na posição média entre os máximos do ^{60}Co e ^{203}Hg (21,4 cm abaixo do topo do poço).

A Figura 3.6 mostra os resultados obtidos variando-se a posição da ampola transversalmente à direção do eixo vertical do detector. Estas medidas foram feitas com o dispositivo apresentado na Figura 3.8, deslocando-se o tubo de lucite, em posições bem definidas, com precisão $\leq 0,3$ mm. O deslocamento foi feito em dois planos: o plano que passa pelos conectores de sinal e alta tensão ($0^\circ - 180^\circ$) e em relação ao plano ortogonal a este ($90^\circ - 270^\circ$), de maneira a verificar alguma possível diferença na resposta.

Nota-se uma variação ao longo da transversal muito maior que em relação à vertical, cerca de 0,1% por mm. Entretanto, para os suportes de ampolas utilizados na calibração, existe apenas um

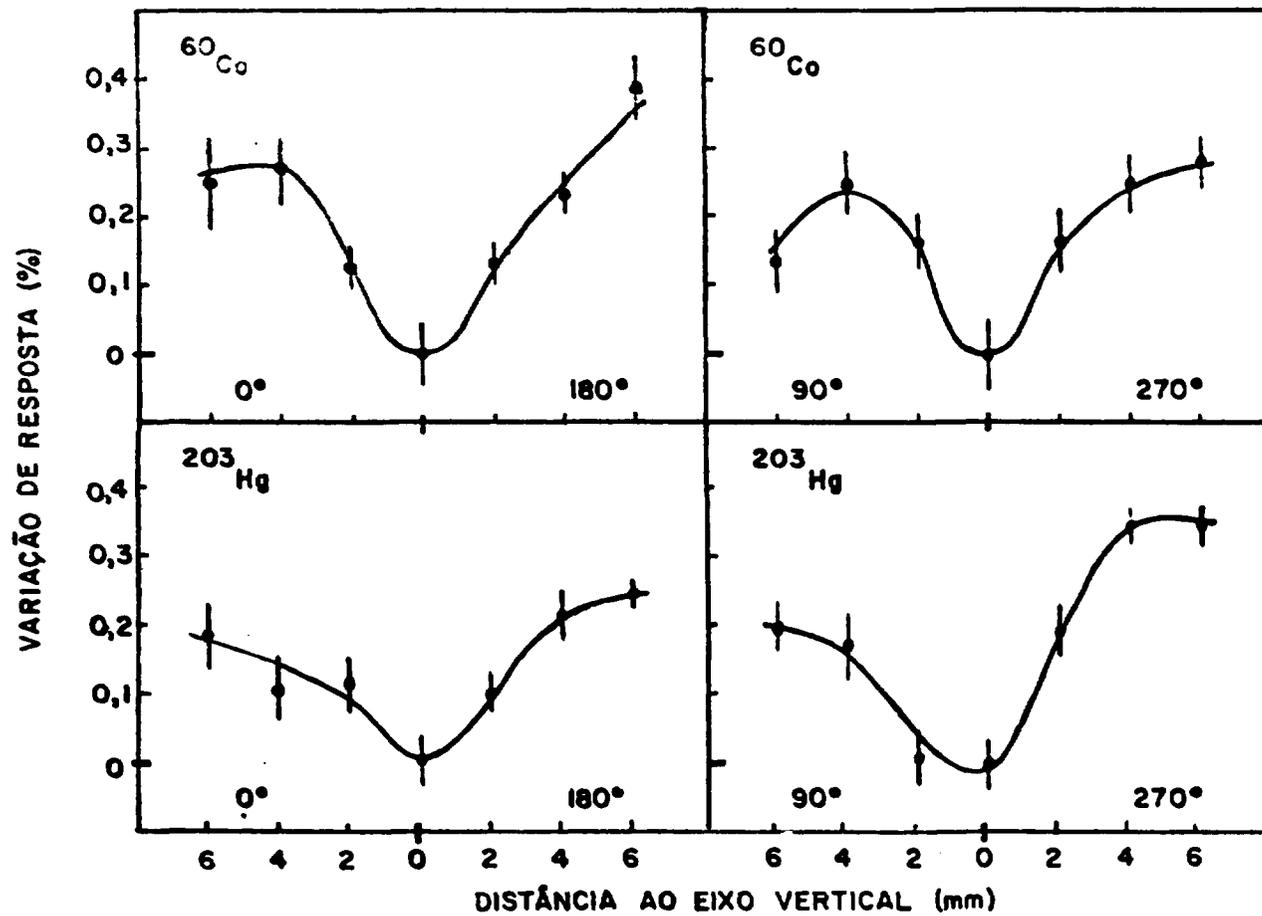


Figure 3.6 — Variação de Resposta, Deslocando a Ampola ao Longo da Direção Transversal — ^{203}Hg (279 KeV) e ^{60}Co (1,25 MeV)

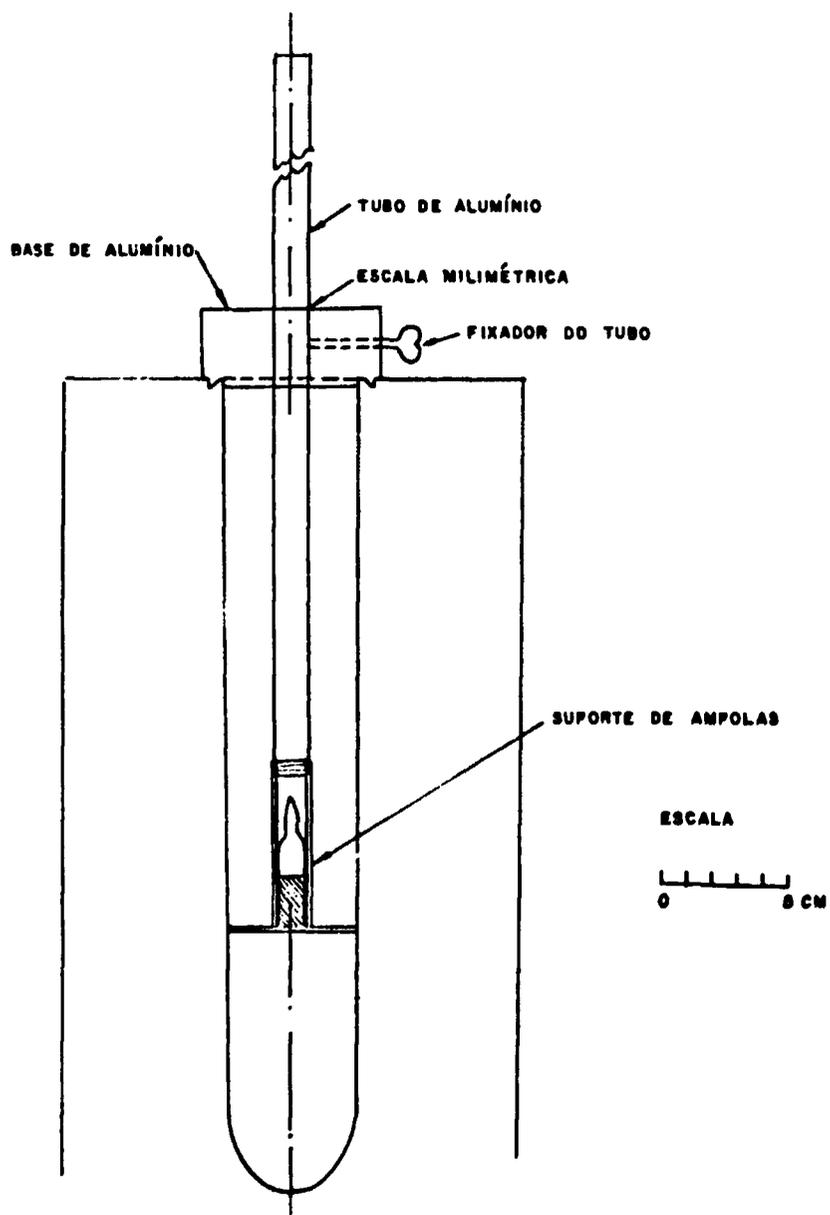


Figura 3.7 – Dispositivo para Deslocamento Vertical de Amostra

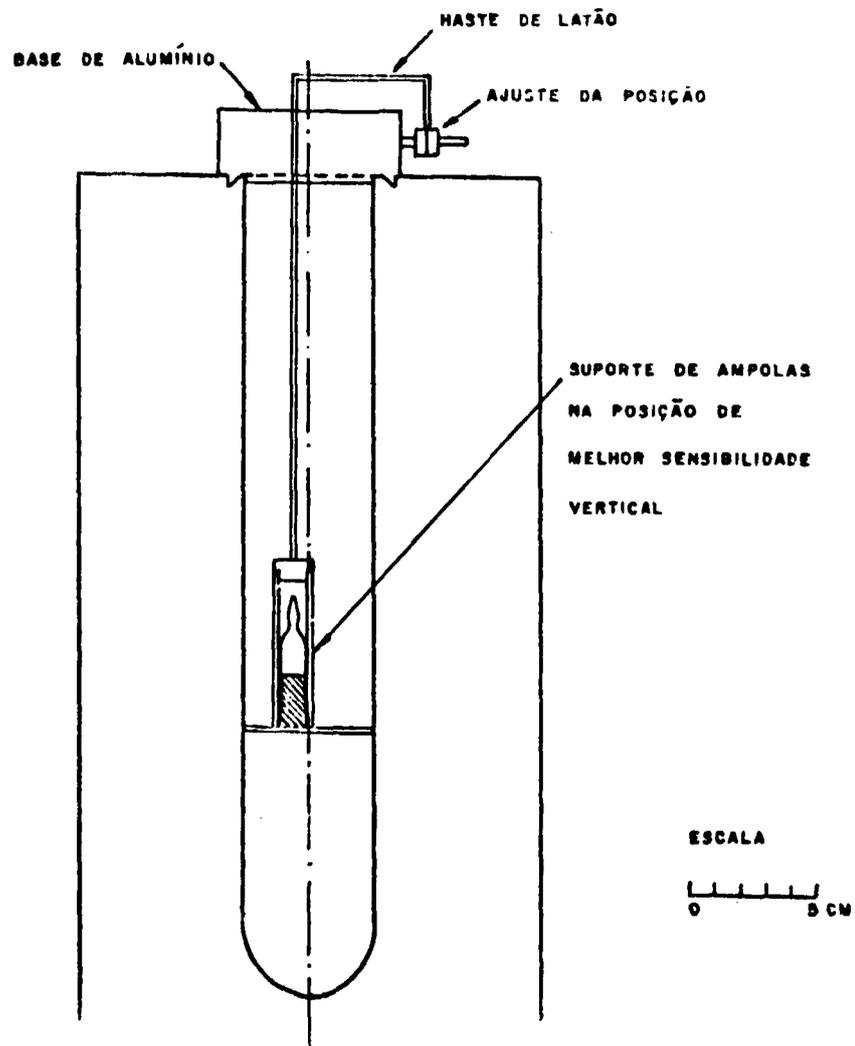


Figura 3.8 - Dispositivo para Deslocamento Transversal da Amostra

pequeno espaço anular entre a ampola e o suporte, ou entre o suporte e o poço do detector estimado em $\leq 0,3$ mm que corresponde a uma variação menor que 0,03%.

Verifica-se, para distâncias maiores a partir da posição central, uma certa anisotropia na resposta da câmara. As hipóteses mais prováveis para esta anisotropia são: a) uma possível excentricidade dos eletrodos ou b) a posição não central do eletrodo de alta tensão⁽¹⁷⁾. Foram efetuadas medidas utilizando outras Câmaras similares e constatou-se que o comportamento era semelhante ao apresentado, ou seja, verifica-se que a resposta é menor que a esperada na região entre 0 a 90°, região esta próxima ao conector de alta tensão. Este fato leva a crer que a hipótese (b) é a mais viável.

3.1.5 – Variação de Resposta em Função da Corrente de Ionização no Volume Sensível do Detetor

A câmara de ionização trabalha em regime de saturação de corrente. Para níveis elevados de corrente pode haver perda na coleção de íons, definida como Perda de Saturação.

Para verificar a perda de saturação do detector na região de altas correntes, foi irradiada uma amostra de ^{51}V (n,γ) ^{52}V de modo a se conseguir uma atividade superior a 25 mCi e acompanhou-se a variação de corrente em função do seu decaimento radioativo ($T_{1/2} = 3,746$ min).

Esta atividade é suficiente para atingir o limite superior de medidas de integração de corrente do Sistema, que está em torno de 3×10^{-8} A. ($\Delta t \sim 5$ seg na escala de 1×10^{-7} C).

A Figura 3.9 mostra os resultados obtidos em 23 medidas de $\Delta V/\Delta t$.

Considerando que para estas medidas, Δt variou entre ~ 5 a 60 seg, foi necessário efetuar a correção para decaimento durante cada integração, tomando como referência o instante do início da integração. Para isto utilizou-se a relação seguinte:

$$\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_c = \left[\frac{\Delta V}{\Delta t} - B\right] \frac{\lambda \Delta t}{(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \quad (3.1)$$

onde

λ = constante de decaimento do ^{52}V

$$\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)_c = \left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right) \text{ corrigido}$$

$$B = \frac{\Delta V}{\Delta t} \text{ para a radiação de fundo.}$$

Ajustando-se para os 15 primeiros pontos (de menor corrente) uma reta por mínimos quadrados, com os valores $\ln\left(\frac{\Delta V}{\Delta t}\right)$ em função do tempo, obteve-se o valor da meia-vida para o ^{52}V :

$$T_{1/2} = (3,7462 \pm 0,0020) \text{ min que concorda bem com o valor da literatura:}$$

$$T_{1/2} = (3,746 \pm 0,007) \text{ min}^{(22)}.$$

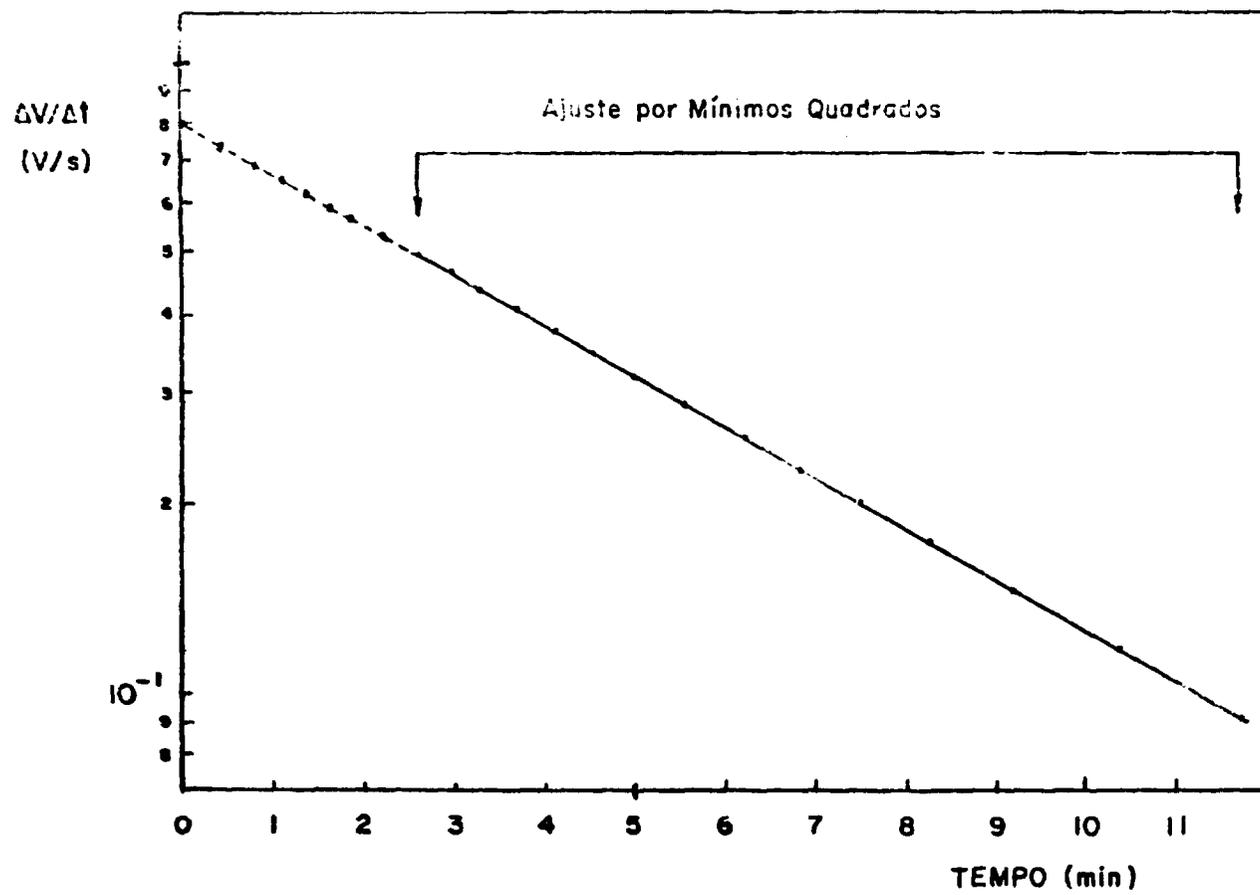


Figura 3.9 – Medida do Decaimento do ^{52}V

Isto mostra que, dentro da incerteza da meia-vida da Literatura (0,19 %), não há fuga de linearidade para estes pontos. Na Figura 3.10, os oito pontos restantes são comparados com os valores obtidos pelo ajuste citado.

Observa-se uma flutuação em torno do valor ajustado $\leq 0,1\%$, com exceção de 2 pontos em que atingem $\sim + 0,3\%$. Mesmo para estes 2 pontos, a flutuação pode ser atribuída ao sistema e não à perda de saturação do detetor, visto que resultaram maior que o valor ajustado.

Ajustando-se os 18 pontos obtidos para a escala 1×10^{-9} C (utilizada na calibração do Sistema) obteve-se para a meia-vida, o valor:

$$T_{1/2} = (3,7675 \pm 0,0034) \text{ min}$$

que é maior que o valor previsto em 0,3%.

Esta discrepância pode ser atribuída a uma pequena contaminação de algum nuclídeo de meia-vida mais longa, que se torna detectável em níveis mais baixos de corrente.

Destas considerações pode-se dizer que o limite superior para a medida de atividade é imposto pelo sistema e não pelo detetor. Este limite será apresentado na Tabela III.3.11 para cada um dos radionuclídeos utilizados na calibração do sistema.

3.2 – Medidas com o Monitor

3.2.1 – Instabilidade no Tempo

A Figura 3.11 mostra a variação de resposta do Sistema de Câmara de Ionização para uma fonte de ^{60}Co durante dias consecutivos, utilizando a escala de 1×10^{-9} C do Eletrômetro.

A variação estimada, no caso mais crítico foi 0,35% por dia. Admitindo uma variação monotônica com o tempo, foi suficiente uma única medida do Monitor (Solução de $^{60}\text{Co} \sim 92\mu\text{Ci}$) para a correção de instabilidade no tempo, para medidas efetuadas em tempo menor que 2 horas. Para a escala de 1×10^{-9} C (maioria das medidas) a precisão obtida na monitoração foi da ordem de 0,05%.

3.2.2 – Fator de Mudança de Escala

Para a escala de 1×10^{-10} C, utilizada para a medida de radiação de fundo e fontes muito pouco ativas, o nível de discriminação superior fixado foi 2,0 Volts, acarretando um fator de mudança de tempo de integração em relação a 1×10^{-9} C, (para uma mesma fonte) da ordem de 50. Isto limitou a precisão obtida na monitoração para a mudança de escala em $\sim 0,15\%$.

Foram feitas várias medidas deste fator de escala que são mostradas na Tabela III.2.1 em datas diferentes e com nuclídeos diversos.

Os resultados mostram que o erro na estimativa do fator de escala pelo seu valor médio, é $\pm 0,44\%$ (para uma medida), o que dispensa a monitoração da corrente de fundo para relações corrente-fonte/corrente de fundo maiores que ~ 15 .

3.2.3 – Fator de Normalização

Os valores do fator de normalização para as medidas, que englobe instabilidade do Sistema no

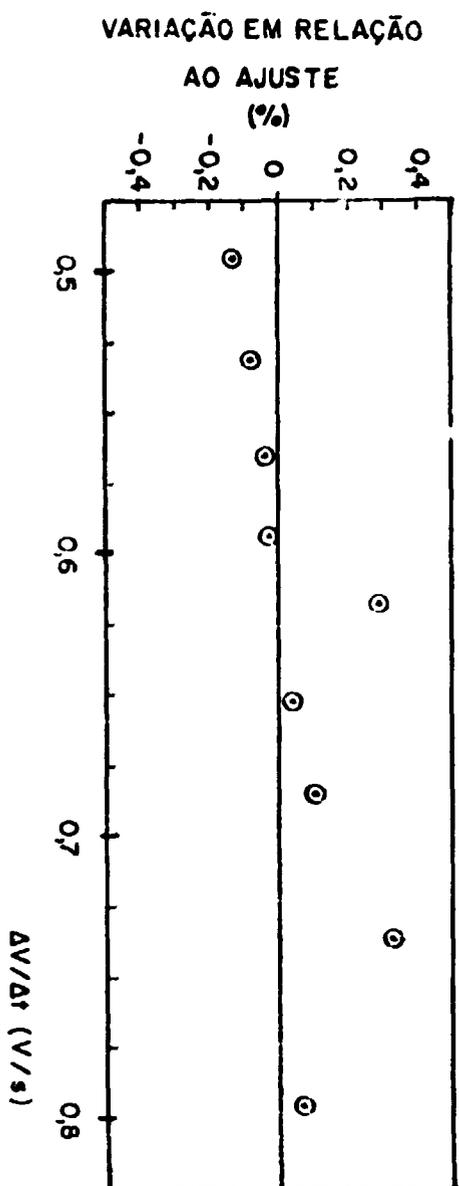


Figura 3.10 - Comportamento de $\Delta V/\Delta t$ para os 8 Pontos de maior Corrente

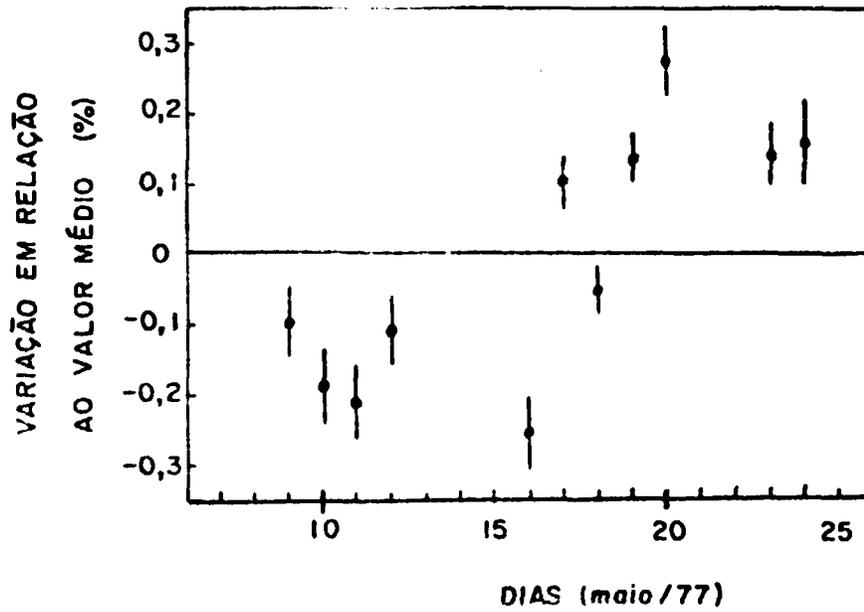


Figura 3.11 -- Variação de Resposta do Monitor com o Tempo (^{60}Co , $92\ \mu\text{Ci}$)
 Valor médio = $0,57477\ \text{V/seg}$

Tabela III.2.1

Medidas do Fator de Escala (F.E.) entre as Escalas $1 \times 10^{-10}\text{C}$ e $1 \times 10^{-9}\text{C}$

Fonte	Data	F.E. $\times 10^{-2}$	Desvio em F.E. (%)
^{60}Co	03/08/77	9,808	0,18
^{134}Cs	11/08/77	9,797	0,14
(Cd) ^{134}Cs	26/08/77	9,784	0,15
^{241}Am	21/10/77	9,735	0,18
^{203}Hg	03/11/77	9,853	0,17
Média $(9,795 \pm 0,043) \times 10^{-1}$ (0,44%, desvio de cada medida)			

tempo, mudança de escala e correção de linearidade para a mesma escala (f_N), é obtido pela medida do Monitor (^{60}Co) por meio da relação:

$$f_N = \frac{\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R}{\langle \Delta V/\Delta t \rangle_X} \quad (3.2)$$

onde

$\langle \Delta V/\Delta t \rangle_X$ é a medida do monitor para a amostra na condição considerada (suporte, escala, nível de discriminação)

e $\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R$ é o valor de $\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ de referência.

Os valores adotados para $\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R$ foram os primeiros valores obtidos para $\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ do monitor, em escala cronológica com relação às medidas dos radionuclídeos para a calibração do Sistema. Os valores adotados para $\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R$ e estão na Tabela III.2.2 para a data de referência 29/04/77 0110 hs.

Tabela III.2.2

Valores de Referência $\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R$ para o Monitor

Condição de Medida	Suporte	$\langle \Delta V/\Delta t \rangle_R$ (V/S)
Sem Blindagem	Lucite	0,575115
Com Blindagem	Lucite	0,576360
Com Blindagem	Lucite-Cádmio	0,568126

3.3 – Medidas com Radionuclídeos

A seguir são apresentados os resultados obtidos na calibração dos seguintes radionuclídeos: ^{139}Ce , ^{22}Na , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{24}Na , ^{198}Au , ^{241}Am e ^{42}K , respectivamente.

Estes radionuclídeos foram escolhidos por ser possível a sua padronização no Sistema Absoluto (4π -($\alpha\beta$) ou por coincidências 4π (β, X, e_A)- γ), e por cobrirem uma faixa larga de energias gama, conveniente para a construção das curvas de Eficiência Relativa Gama em função da Energia.

Com os resultados destas medidas determinou-se o Fator de Calibração (já definido no item 2.3.2.e). Com este fator pode-se fazer determinações de atividade pelo Método Direto, ou seja, comparando a resposta da Câmara de Ionização para uma solução desconhecida com a resposta obtida (para o mesmo radionuclídeo) com a solução padronizada no Sistema Absoluto.

Pode-se também determinar a atividade de outros radionuclídeos pelo Método Indireto, utilizando para isso as Curvas de Eficiência Relativa Gama que serão determinadas no Capítulo 4. Neste caso, a resposta da Câmara de Ionização para os radionuclídeos padronizados, apresentada no presente capítulo, é desdobrada para se determinar a contribuição de cada um dos gamas do radionuclídeo considerado. Além disso, é necessário subtrair a contribuição dos betas na resposta dos radionuclídeos.

Isto foi feito utilizando uma Curva de Eficiência Relativa Beta em função da energia beta. Para isso foram padronizadas soluções de emissores beta-puros, ^{39}S , ^{204}Tl e ^{32}P , no Sistema Absoluto $4\pi\text{-}\beta$ e medida a resposta no Sistema de Câmara de Ionização. O resultado destas medidas estão no final deste Capítulo, item 3.3.10. A curva de eficiência para betas se encontra no Capítulo 4.

No presente Capítulo, cada radionuclídeo é apresentado separadamente, indicando respectivamente:

a) Esquema de Decaimento e principais parâmetros nucleares de interesse para a calibração. Os símbolos utilizados são os seguintes:

- C.E. Transição por Captura de Elétrons
- $e_{\text{C}_{\text{K,L}}}$ Elétrons de Conversão Interna da Camada K, L, etc.
- α_{T} coeficiente de Conversão Interna Total.
- $X_{\text{K, L, ...}}$ Raio-X da Camada K, L, etc.
- γ radiação gama
- β^- e β^+ radiação beta
- α radiação alfa
- $e_{\text{A}_{\text{K, L}}}$ elétrons Auger da camada, K, L, etc.

b) Medida Absoluta da Atividade Específica em Sistema $4\pi(\alpha,\beta)$ ou por Coincidência $4\pi(\beta, X, e_{\text{A}})\gamma$

Os pormenores do método são descritos no APÊNDICE. A unidade adotada para a Atividade é o Becquerel (B_q) que corresponde a 1 dps (desintegração por segundo).

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Neste ítem são apresentados os resultados das medidas das ampolas cujas soluções foram padronizadas no Sistema Absoluto. Estes resultados são apresentados em 3 condições diferentes de medida:

- Detector sem Blindagem, suporte de ampolas com 2 mm de LUCITE (S/ BLIND.-LU).
- Detector com Blindagem, suporte de ampolas com 2 mm de LUCITE (C/ BLIND.-LU).
- Detector com Blindagem, suporte de ampolas com 2 mm de LUCITE, revestido com 0,7 mm de Cádmiio (C/ BLIND.-LU/CD).

São apresentados $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$, o desvio da média e a incerteza sistemática, descritos no ítem 2.3.2.d. Em seguida é apresentado o fator de normalização (f_N), descrito no ítem 3.2.3. Finalmente é apresentado o Fator de Calibração (F), descrito no ítem 2.3.1.e.

3.3.1 - ^{139}Ce

a) Esquema de Decaimento

O ^{139}Ce é um radionuclídeo que decai por Captura de Elétrons, seguida de emissão de um gama de 165.8 keV (Figura 3.12).

A Tabela III.3.1a apresenta os valores dos parâmetros principais do esquema de decaimento do ^{139}Ce .

Tabela III.3.1a

Transições Principais do ^{139}Ce [24]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
e_{CK}	126,9	0,170 ± 0,002
X_K (média)	34,1	0,764 ± 0,037
γ	165,85 ± 0,15	0,8006 ± 0,0016 [13]

Com relação à corrente de ionização produzida na Câmara de Ionização, foram consideradas desprezíveis as contribuições do raio X da camada L pela baixa energia (4 – 6 keV); dos elétrons Auger pela baixa energia (2 – 6 keV; 90%) ou intensidade (26 – 38 keV; 7,9%); dos elétrons de conversão e_{CL} , $e_{CM,N}$ pela baixa intensidade ($\leq 2\%$). A meia-vida adotada foi: (137,85 ± 0,07) dias^[24].

b)

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{139}Ce

A medida absoluta foi feita pelo método de Coincências $4\pi(e_A, X)\gamma$, pela detecção do Raio-X e elétrons Auger no detector proporcional e discriminando os cintiladores de NaI(Tl) no fotopico de 165,85 keV.

A solução de ^{139}Ce utilizada, foi enviada pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures) ao Laboratório de Metrologia Nuclear (L.M.N), do I.E.A., com o propósito de uma Comparação Internacional para a Padronização deste Radionuclídeo.

A Atividade Específica da solução Matriz foi determinada como sendo a média entre 44 fontes em 6 diluições. A Tabela III.3.1b mostra os resultados obtidos, que concordou com os valores obtidos pelo BIPM^[24], dentro da incerteza experimental.

Tabela III.3.1b

Atividade Específica do ^{139}Ce

	Atividade Bg/q x 10^5	Desvio Padrão da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	Data de Referência (Hora Universal)	
LMN	7,085	0,04	0,21	15/3/76	0,00 hs
BIPM	7,111	0,07	0,57		[24]

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

A ampola selada utilizada na calibração foi enviada pelo B.I.P.M., possuindo a massa de $3,50497 \text{ g} \pm 10 \mu\text{g}$.

As medidas de $\Delta V/\Delta t$ são apresentadas na Tabela III.3.1c. A medida na condição C/BLIND-LU, foi feita na escala de 1×10^{-10} do Eletrômetro.

Tabela III.3.1c

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{139}Ce

	$\Delta V/\Delta t$ V/S x 10^{-2}	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. V/S x 10^{-3}
S/BLIND. -LU	3,6197	0,16	0,11	1,150
C/BLIND. -LU	37,122	0,094	0,14	0,2934
C/BLIND. -LU/CD	2,7453	0,19	0,14	0,2964

O fator de normalização (f_N) e o Fator de Calibração (F) são apresentados na Tabela III.3.1d.

Tabela III.3.1d

Fatores f_N e F para o ^{139}Ce

	f_N	Desvio em f_N (%)	F V/S/Bq x 10^{-8}	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	1,00000	0,061	1,4576	0,27
C/BLIND. -LU	0,098329	0,132	1,4685	0,27
C/BLIND. -LU/CD	1,00000	0,043	1,1055	0,27

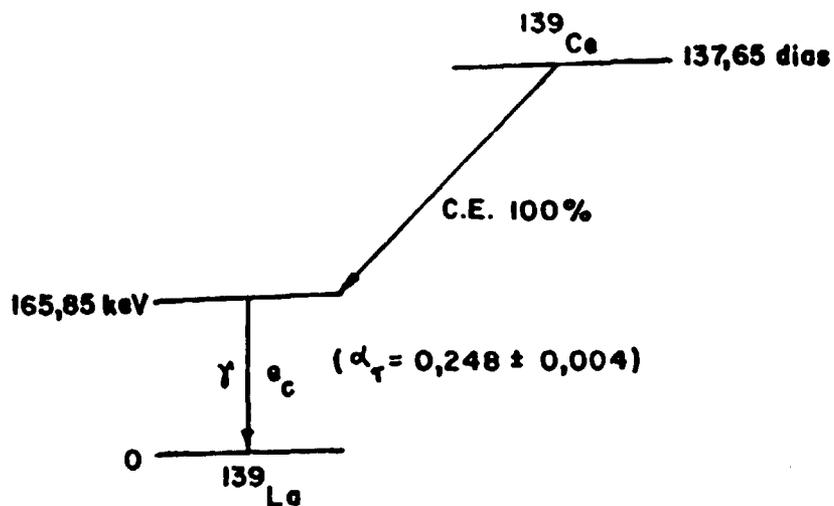


Figura 3.12 -- Esquema de Decaimento do ^{139}Ce [24]

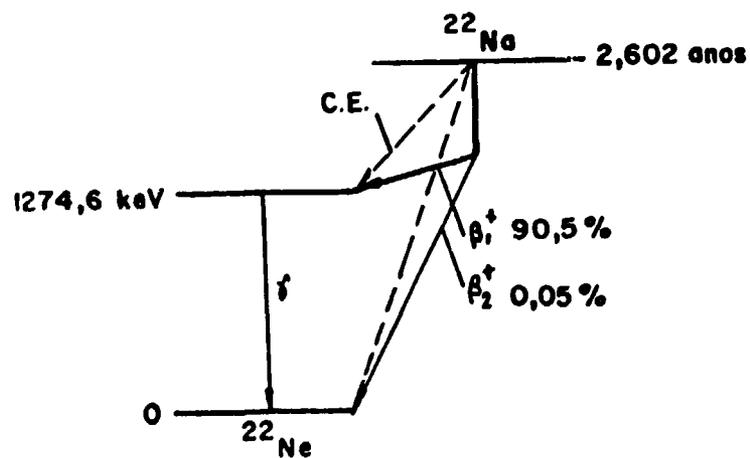


Figura 3.13 -- Esquema de Decaimento ^{22}Na [15]

3.3.2 – ^{22}Na

a) Esquema de Decaimento

O ^{22}Na decai por emissão β^+ (90,55%) e C.E. (9,45%), seguida da emissão de um gama de 1274,6 keV (Figura 3.13).

As Tabelas III.3.2a e b apresentam os valores dos parâmetros principais do decaimento do ^{22}Na .

Tabela III.3.2a

Transições β^+ e e_A do ^{22}Na [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
e_{AK}	0,76 – 0,83	~ 0,085
β_1^+	545,4 ± 1,3 (máx)	0,9050 ± 0,0015
β_2^+	1822,0 ± 1,3 (máx)	0,0005 ± 0,0003

Tabela III.3.2b

Transição X e γ [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
X_K	0,849 – 0,858	~ 0,0016
γ	1274,54 ± 0,04	0,9995 ± 0,0003

A meia-vida adotada foi $2,602 \pm 0,004$ anos⁽¹⁵⁾.

Foram consideradas desprezíveis na corrente de ionização da Câmara, as contribuições dos elétrons Auger e do raio-X do ^{22}Na , pelas baixas energias e intensidades envolvidas.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{22}Na

Para a medida absoluta foi adotado o método de coincidência $4\pi\beta^+\gamma$, pico-gama nuclear, pela detecção de β^+ , X e e_A na via beta e detectando apenas os pulsos do fotopico de 1274 keV, na via gama. Este foi um dos métodos utilizados pelo LMN, por ocasião da Intercomparação com o P.T.B. (Physikalisch Technische Bundesanstalt), em 1972.

Da solução de ^{22}Na , fornecida pela Philips-Duphar, na forma de cloreto de sódio, com cerca de $1 \times 10^6 \text{ Bq/g}$, foram preparadas 3 diluições de precisão. As atividades das várias fontes, preparadas destas diluições estão apresentadas nas Tabelas III.3.2c, d, e. Fd é o fator de diluição da solução considerada.

A data de referência adotada foi 13/9/76 0.00 hs.

Tabela III.3.2d

Atividades de ^{22}Na : 2a. Diluição
Fd = 13,653684

Fonte	Atividade Específica $\times 10^6 \text{ Bq/g}$	Erro Estat. $\times 10^{-2} (\%)$	Erro Sist. $\times 10^{-2} (\%)$
1	7,3338	4,51	4,53
2	7,3445	5,87	3,68
3	7,3539	5,48	5,05
4	7,3555	6,95	4,81
5	7,3550	2,37	3,88
6	7,3701	8,14	4,81
7	7,3545	6,87	5,25
MP = $(7,3517 \pm 0,0034) \times 10^6 \text{ Bq/g}$; NP = $(7,3525 \pm 0,0042) \times 10^6 \text{ Bq/g}$			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

Tabela III.3.2c

Atividades de ^{22}Na : 1a. Diluição
Fd = 18,930351

Fonte	Atividade Específica $\times 10^6 \text{ Bq/g}$	Erro Estat. $\times 10^{-2} (\%)$	Erro Sist. $\times 10^{-2} (\%)$
1	5,2824	5,18	7,19
2	5,2640	6,40	5,50
3	5,2876	1,23	7,19
4	5,2757	14,6	8,78
5	5,3044	3,45	9,69
6	5,2868	12,7	9,17
MP $(5,2954 \pm 0,0084) \times 10^6 \text{ Bq/g}$; NP $(5,2835 \pm 0,0055) \times 10^6 \text{ Bq/g}$			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

Tabela III.3.2e

Atividades de ^{22}Na : 3a. Diluição
 $F_d = 15,715496$

Fonte	Atividade Específica $\times 10^4 \text{ Bq/g}$	Erro Estat. $\times 10^{-2} (\%)$	Erro Sist. $\times 10^{-2} (\%)$
1	6,3590	4,51	5,50
2	6,3550	7,47	5,60
3	6,3514	6,65	4,84
4	6,3679	8,90	5,71
5	6,3523	4,38	5,78
6	6,3757	3,49	4,45
7	6,3578	5,69	5,78
$MP = (6,3622 \pm 0,0039) \times 10^4 \text{ Bq/g}$; $NP = (6,3599 \pm 0,0034) \times 10^4 \text{ Bq/g}$			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

A atividade específica da solução original (S.O.) é obtida das atividades das soluções diluídas, multiplicadas pelo fator de diluição (F_d) e ponderadas segundo $1/\sigma_i^2$, onde σ_i é o desvio de cada média parcial. Dessa forma, obtém-se:

$$\begin{aligned} A(\text{S.O.}) &= (1,0023 \pm 0,0013) \times 10^6 \text{ Bq/g (ponderada)} \\ &= (1,0011 \pm 0,0014) \times 10^6 \text{ Bq/g (não pond.)} \end{aligned}$$

que coincidem dentro do desvio estatístico.

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Foram feitas medidas de $\Delta V/\Delta t$ com uma ampola contendo $3,259092 \text{ g} \pm 10 \mu\text{g}$ da solução original, as quais são apresentadas na Tabela III.3.2f.

Os fatores f_N e F estão na Tabela III.3.2g.

Tabela III.3.2f

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{22}Na

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-1}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	5,11403	0,037	0,03	1,1064
C/BLIND. -LU	5,14085	0,043	0,04	0,2999
C/BLIND. -LU/CD	5,00957	0,043	0,04	0,2964

Tabela III.3.2g

Fatores de Calibração para o ^{22}Na

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $V/S/Bg \times 10^{-7}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	0,99900	0,054	1,56391	0,15
C/BLIND. -LU	0,99688	0,060	1,56878	0,15
C/BLIND. -LU/CD	1,00000	0,043	1,53350	0,15

3.3.3 - ^{60}Co

a) Esquema de Decaimento

O ^{60}Co decai por emissão β^- , principalmente por um ramo com $E_{\beta_{\text{máx}}} = 317 \text{ keV}$ (99,89%), seguido de dois gamas de 1,173 e 1,332 MeV em cascata (Figura 3.14).

Os valores dos parâmetros principais do esquema estão nas Tabelas III.3.3a, b.

Foram consideradas desprezíveis as contribuições dos elétrons Auger, elétrons de conversão e alguns ramos β^- (β_1 , β_3 e β_4), em virtude da baixa intensidade de ($\leq 0,1\%$); dos raios-X pelas baixas energias ($\leq 8 \text{ keV}$) e baixas intensidades ($\leq 10^{-2}\%$); os gamas γ_1 , γ_2 , γ_3 , γ_6 , γ_7 pela baixa intensidade ($\leq 5 \times 10^{-2}\%$), com relação à corrente produzida na Câmara de Ionização.

Tabela III.3.3a

Transição β^- Principal do ^{60}Co [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
β_1^-	317,9	99,89 \pm 0,06

Tabela III.3.3b

Transição γ Principais do ^{60}Co [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
γ_4	1173,22 \pm 0,05	0,9987 \pm 0,0006
γ_5	1332,51 \pm 0,05	0,99980 \pm 0,00009

Tabela III.3.3c

Atividade Específica do ^{60}Co

Atividade Específica $\times 10^4$ Bq/g	Desvio Padrão da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)
5,4747	0,04	0,14

O valor da meia-vida adotada foi $5,272 \pm 0,007$ anos⁽¹⁵⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{60}Co

A medida absoluta foi feita pelo método de coincidência $4\pi\beta^-\gamma$, detectando-se os pulsos dos fotopicos de 1,173 + 1,332 MeV, que não são resolvidos pelos cintiladores de NaI(Tl).

A solução utilizada na calibração foi obtida por irradiação de ^{59}Co (n,γ) ^{60}Co no Reator IEA-R1, com o propósito de uma outra Comparação Internacional com o BIPM em 1976, utilizando uma solução produzida pelo próprio LMN. O resultado da comparação foi que a medida das atividades das ampolas BIPM, confirmaram o valor da atividade específica medida pelo LMN, dentro do erro experimental⁽²⁴⁾. A atividade é apresentada na Tabela III.3.3c, para a data de referência de 28/6/76 0,00 hs Hora Universal.

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Uma ampola, com massa $3,701035 \text{ g} \pm 10 \mu\text{g}$ foi medida e os valores de $\Delta V/\Delta t$ obtidos estão na Tabela III.3.3d, sendo que os valores de f_N e F estão na Tabela III.3.3e.

Tabela III.3.3d

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{60}Co

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-2}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	3,37481	0,075	0,03	1,1064
C/BLIND. -LU	3,38021	0,043	0,03	0,2909
C/BLIND. -LU/CD	3,33492	0,056	0,03	0,3028

Tabela III.3.3e

Fatores de Calibração para o ^{60}Co

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $V/S/\text{Bq} \times 10^{-7}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	0,99900	0,054	1,6656	0,17
C/BLIND. -LU	1,00000	0,056	1,6683	0,16
C/BLIND. -LU/CD	1,00221	0,057	1,6459	0,16

3.3.4 - ^{134}Cs

a) Esquema de Decaimento

O ^{134}Cs decai por emissão β^- em dois ramos principais (89 e 658 keV), seguidos de várias transições gama, das quais as mais intensas são as de 604,8 keV (98,12%) e 796,8 keV (86,4%). (Figura 3.15).

As Tabelas III.3.4a, b mostram as transições principais do ^{134}Cs .

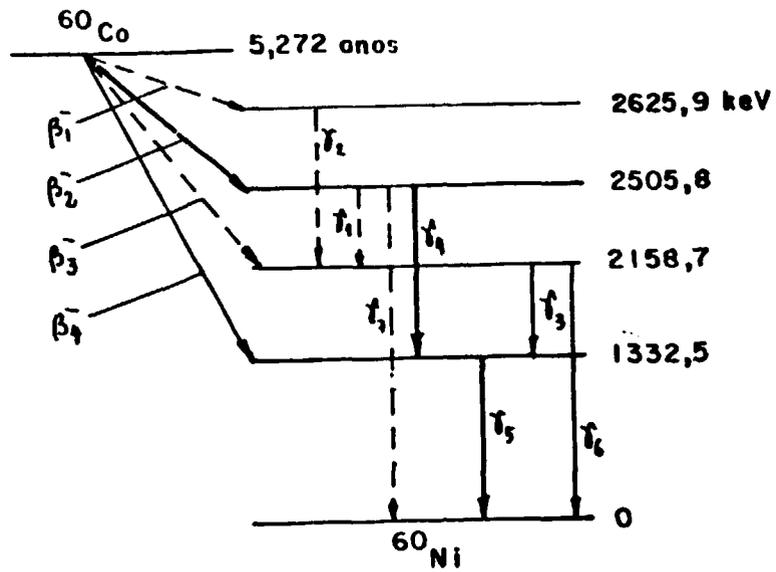


Figura 3.14 – Esquema de Decaimento do ^{60}Co [15]

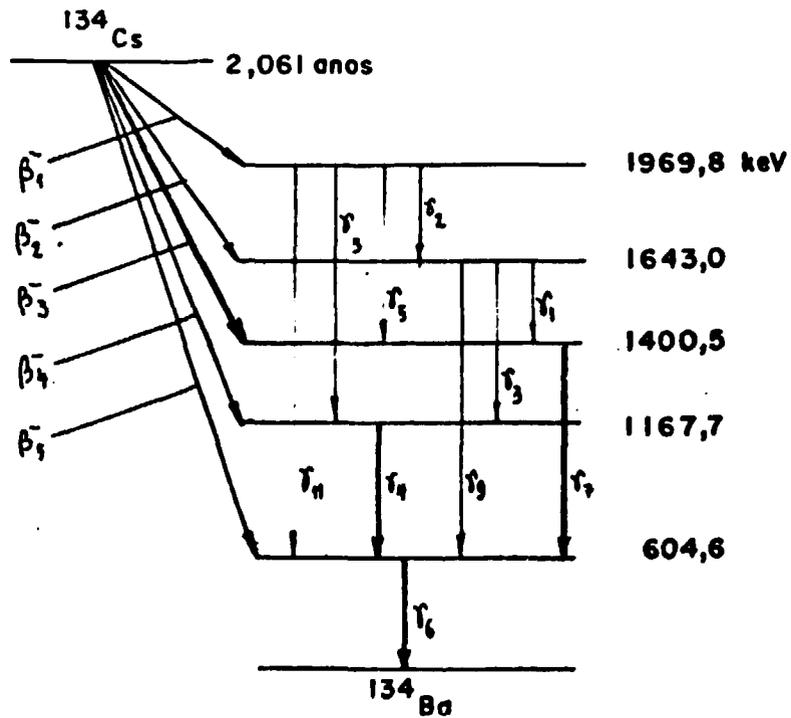


Figura 3.15 – Esquema de Decaimento do ^{134}Cs [15]

Tabela III.3.4a

Transição β^- do ^{134}Cs [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
β_1	89 \pm 1	0,271 \pm 0,015
β_2	415 \pm 1	0,0254 \pm 0,014
β_3	658 \pm 1	0,703 \pm 0,015
β_4	891 \pm 1	0,0004 \pm 0,0003
β_5	1454 \pm 1	0,00008 \pm 0,00006

Tabela III.3.4b

Transição X e γ do ^{134}Cs [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
X_K	31,8 - 37,3	0,0083 \pm 0,0008
γ_1	242,5 \pm 0,4	0,00022 \pm 0,00005
γ_2	326,8 \pm 0,4	0,00014 \pm 0,00005
γ_3	475,34 \pm 0,13	0,0149 \pm 0,0008
γ_4	563,20 \pm 0,13	0,084 \pm 0,004
γ_5	569,35 \pm 0,13	0,150 \pm 0,007
γ_6	604,64 \pm 0,13	0,9754 \pm 0,0010
γ_7	795,84 \pm 0,13	0,851 \pm 0,008
γ_8	802,07 \pm 0,26	0,068 \pm 0,006
γ_9	1038,38 \pm 0,26	0,0102 \pm 0,0005
γ_{10}	1167,7 \pm 0,3	0,0188 \pm 0,0007
γ_{11}	1365,19 \pm 0,15	0,032 \pm 0,002

Para a corrente da Câmara de Ionização foram consideradas desprezíveis as contribuições dos elétrons Auger, pela baixa energia (< 40 keV); dos elétrons de conversão, pela baixa intensidade (\leq 0,1%) e do raio- X_L pela baixa energia e intensidade (< 8 keV, \sim 0,1%).

O valor da Meia-Vida adotado foi (2,061 \pm 0,006) anos⁽¹⁸⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{134}Cs

A solução importada de ^{134}Cs , fornecida pela firma AMERSHAM/SEARLE CORP. U.S.A., na forma de cloreto (CsCl), foi analisada em detector de Ge-Li, para a verificação de possíveis traços de ^{137}Cs (Figura 3.16). A análise do espectro mostrou que a contribuição de ^{137}Cs é $\leq 0,08\%$.

A medida absoluta da solução foi feita por dois métodos:

- por coincidência $4\pi\beta\gamma$, detectando-se os pulsos dos fotopicos de 569 + 604 keV na via gama, que não são resolvidos pelo cintilador NaI(Tl).
- idem nos fotopicos de 795 + 802 keV.

Para cada um dos casos foi determinada a correção para esquema de decaimento, que resultou:

$$C(569 + 604 \text{ Kev}) = (7,0 \pm 5,9) \times 10^{-3}$$

com um erro na atividade extrapolada da fonte de 0,13%.

$$C(795 + 802 \text{ Kev}) = 0,1455 \pm 0,0064$$

com um erro na atividade extrapolada da fonte de 0,15%.

As Tabelas III.3.34c, d apresentam os resultados obtidos para a atividade das fontes, em cada caso.

Tabela III.3.4c

Atividades de ^{134}Cs , janela em 795 + 802 keV

Fonte	Atividade Específica $\times 10^4 \text{ Bq/g}$	Erro Estat. $\times 10^{-2} (\%)$	Erro Sist. $\times 10^{-2} (\%)$
1	6,74385	3,99	4,84
2	6,75919	5,45	4,53
3	6,74153	3,32	4,35
4	6,73067	4,36	4,28
5	6,73285	7,36	4,74
$MP = (6,7422 \pm 0,0042) \times 10^4 \text{ Bq/g}$; $NP = (6,7416 \pm 0,0051) \times 10^4 \text{ Bq/g}$			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

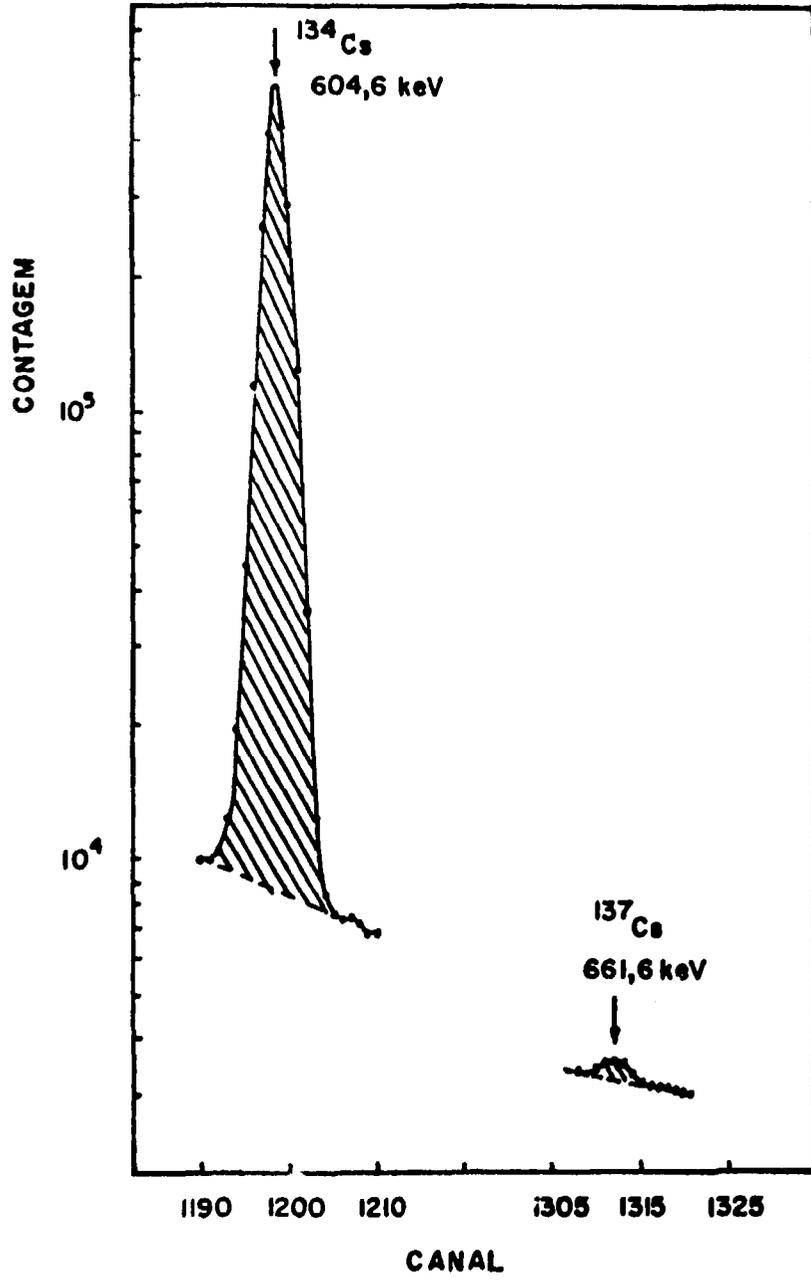


Figura 3.16 - Medida de ^{134}Cs em Detector de Ge-Li para a Verificação de Traços de ^{137}Cs

Tabela III.3.4d

Atividades de ^{134}Cs ; janela em 569 + 604 keV

Fonte	Atividade Específica $\times 10^4$ Bq/g	Erro Estat. $\times 10^{-2}$ (%)	Erro Sist. $\times 10^{-2}$ (%)
1	6,78248	6,42	4,16
2	6,80514	5,18	4,26
3	6,77340	1,55	3,54
4	6,77786	4,08	3,78
5	6,76501	2,15	3,66
6	6,77351	2,56	4,07
MP = $(6,7783 \pm 0,0053) \times 10^4$ Bq/g ; NP = $(6,7796 \pm 0,0056) \times 10^4$ Bq/g			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

Considerando-se a atividade da solução como a média global entre as médias de cada caso, obtém-se:

$$\bar{A} = (6,7603 \pm 0,0180) \times 10^4 \text{ Bq/g. (ponderada)}$$

$$(6,7606 \pm 0,0190) \times 10^4 \text{ Bq/g. (não ponderada)}$$

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Uma ampola, com massa $3,412847 \text{ g} \pm 10 \mu\text{g}$ foi medida, e os valores de $\Delta V/\Delta t$ estão na Tabela III.3.4c, f_N e F estão na Tabela III.3.4f.

Tabela III.3.4e

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{134}Cs

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-3}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	2,67835	0,029	0,07	1,1642
C/BLIND. -LU	2,68200	0,016	0,07	0,2975
C/BLIND. -LU/CD	2,62117	0,050	0,07	0,3040

Tabela III.3.4f

Fatores de Calibração para o ^{134}Cs

	f_N	Desvio em f_N (%)	F V/S/Bq x 10^{-7}	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	0,99952	0,050	1,16028	0,3
C/BLIND. -LU	1,00000	0,056	1,16240	0,3
C/BLIND. -LU/CD	0,99596	0,094	1,13145	0,3

3.3.5 - ^{54}Mn

a) Esquema de Decaimento

O ^{54}Mn decai por Captura de Elétrons, seguida de emissão de um gama de 834,81 keV. A contribuição da emissão de pósitron é desprezível ($I_\beta + < 8 \times 10^{-5}\%$)⁽¹⁵⁾ (Figura 3.17).

A Tabela III.3.5a mostra as transições do ^{54}Mn .

Tabela III.3.5a

Transição Principais do ^{54}Mn [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
X_L	0,50 - 0,65	0,0045 ± 0,0006
X_K (Média)	5,5	0,255 ± 0,009
γ	834,81 ± 0,03	0,99978 ± 0,00002

Foram desprezadas as contribuições devidas aos elétrons Auger pela baixa energia (< 6 keV) e dos elétrons de conversão pela baixa intensidade ($\leq 2 \times 10^{-6}\%$), na corrente da Câmara de Ionização.

A Meia-Vida adotada foi $312,3 \pm 0,3$ dias⁽¹⁵⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{54}Mn

A medida absoluta foi feita pelo método de coincidência $4\pi\alpha\gamma$, discriminando os cintiladores de NaI(Tl) no gama de 834 keV.

Da solução importada de ^{54}Mn , fornecida pela firma AMERSHAN/SEARLE CORP. U.S.A., na forma de cloreto (Mn Cl_2), foram preparadas 9 fontes, cujas atividades medidas são apresentadas na Tabela III.3.5b.

Tabela III.3.5b

Atividades de ^{54}Mn

Fonte	Atividade Específica $\times 10^4$ Bq/g	Erro Estat. $\times 10^{-2}$ (%)	Erro Sist. $\times 10^{-2}$ (%)
1	5,49066	2,59	2,49
2	5,48424	1,92	3,34
3	5,45304	1,41	2,82
4	5,45768	4,48	3,41
5	5,49520	3,72	2,89
6	5,44858	1,51	1,79
7	5,44796	3,84	2,84
8	5,47022	4,33	3,20
9	5,49083	3,69	2,92
MP = $(5,4641 \pm 0,0063) \times 10^4$ Bq/g ; NP = $(5,4709 \pm 0,0065) \times 10^4$ Bq/g			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

A incerteza sistemática estimada para o valor extrapolado das atividades (correção para esquema de decaimento) é de $\pm 0,18\%$.

c) Medidas no Sistema de Câmaras de Ionização

A quantidade de solução de ^{54}Mn disponível para a solução na ampola foi: $2,538561 \text{ g} \pm 10\mu\text{g}$, o que obrigou a completar os 3,5 ml necessários, com solução inativa, a fim de não acarretar variação de sensibilidade na Câmara de Ionização, devido à variação de volume da solução.

As medidas de $\Delta V/\Delta t$, feitas com a ampola, estão na Tabela III.3.5c, f_M e F estão na Tabela III.3.5c.

Tabela III.3.5c

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{54}Mn

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-3}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	8,38391	0,077	0,05	1,1896
C/BLIND. -LU*	85,581	0,139	0,05	0,2934
C/BLIND. -LU/CD	8,17050	0,049	0,05	0,2983

* Escala de 1×10^{-10} Coul.

Tabela III.3.5e

Fatores de Calibração para o ^{54}Mn

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $V/S/\text{Bq} \times 10^{-9}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	1,00007	0,057	6,04454	0,20
C/BLIND. -LU*	0,098239	0,132	6,06111	0,26
C/BLIND. -LU/CD	1,00221	0,057	5,90328	0,20

* Escala de 1×10^{-10} Coul.3.3.6 - ^{24}Na

a) Esquema de Decaiemento

O ^{24}Na decai por emissão β^- , principalmente (99,94%) ao nível de 4122 keV do ^{24}Mg , seguido da emissão de dois gamas de 2754 e 1368 keV, em cascade (Figura 3.18).

Suas transições principais estão apresentadas na Tabela III.3.6a.

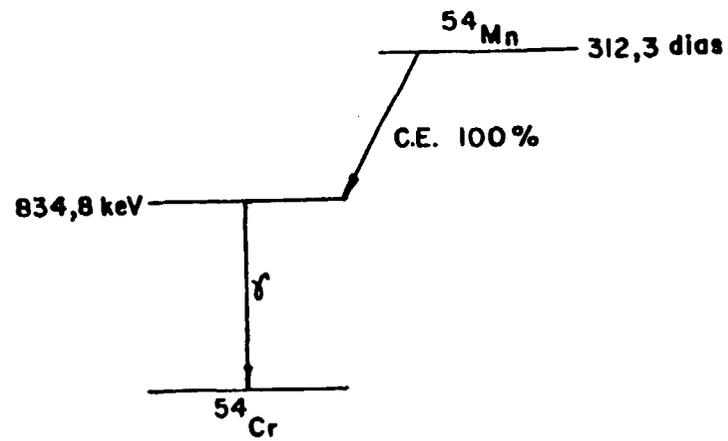


Figura 3.17 - Esquema de Decaimento do ^{54}Mn [15]

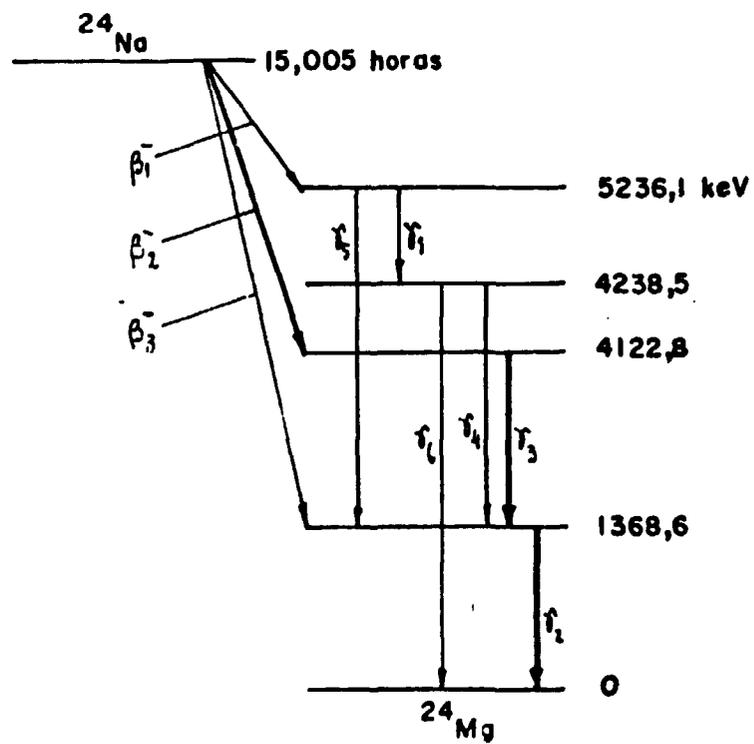


Figura 3.18 - Esquema de Decaimento do ^{24}Na [15]

Tabela III 3 6a

Transição Principais do ^{24}Na [15]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
β_2^-	1391 \pm 2	0,9994 \pm 0,0001
γ_2	1368,54 \pm 0,06	0,99994 \pm 0,00002
γ_3	2754,03 \pm 0,10	0,9987 \pm 0,0002
γ_5	3867,2 \pm 0,5	0,0006 \pm 0,0001

Foram desprezadas as contribuições dos elétrons de conversão, pela baixa intensidade ($< 0,1\%$). O mesmo se deu para os gamas γ_1 ($\sim 0,001\%$), γ_4 (0,0002%) e γ_6 (0,0008%).

A Meia-Vida adotada foi:

$$T_{1/2} = 15,005 \pm 0,015 \text{ horas} \quad [15]$$

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{24}Na

Foi feita pelo método de coincidências $4\pi\beta^-\gamma$, detectando-se os fotopicos de 1368 keV na via gama.

Por ser o único radionuclídeo disponível com energia gama acima de 1,3 MeV e cujo esquema de decaimento se mostrou adequado para as curvas de eficiência relativa gama, decidiu-se calibrar 2 soluções diferentes para reforçar a consistência da calibração.

As soluções foram fornecidas pela Coordenadoria de Processamento de Material Radioativo (CPMR) do I.E.A., obtidas por irradiação de ^{23}Na (n,γ) ^{24}Na .

Para verificar uma possível contaminação de ^{42}K , foi feita a análise em detector de Ge-Li. A Figura 3.19 mostra os resultados destas medidas para a segunda solução de ^{24}Na . Não se notou contribuição de ^{42}K acima de 0,05%.

Os resultados das medidas de atividades das 2 soluções estão apresentados nas Tabelas III.3.6b. A incerteza sistemática estimada em virtude da correção para o esquema de desintegração é $\sim 0,1\%$.

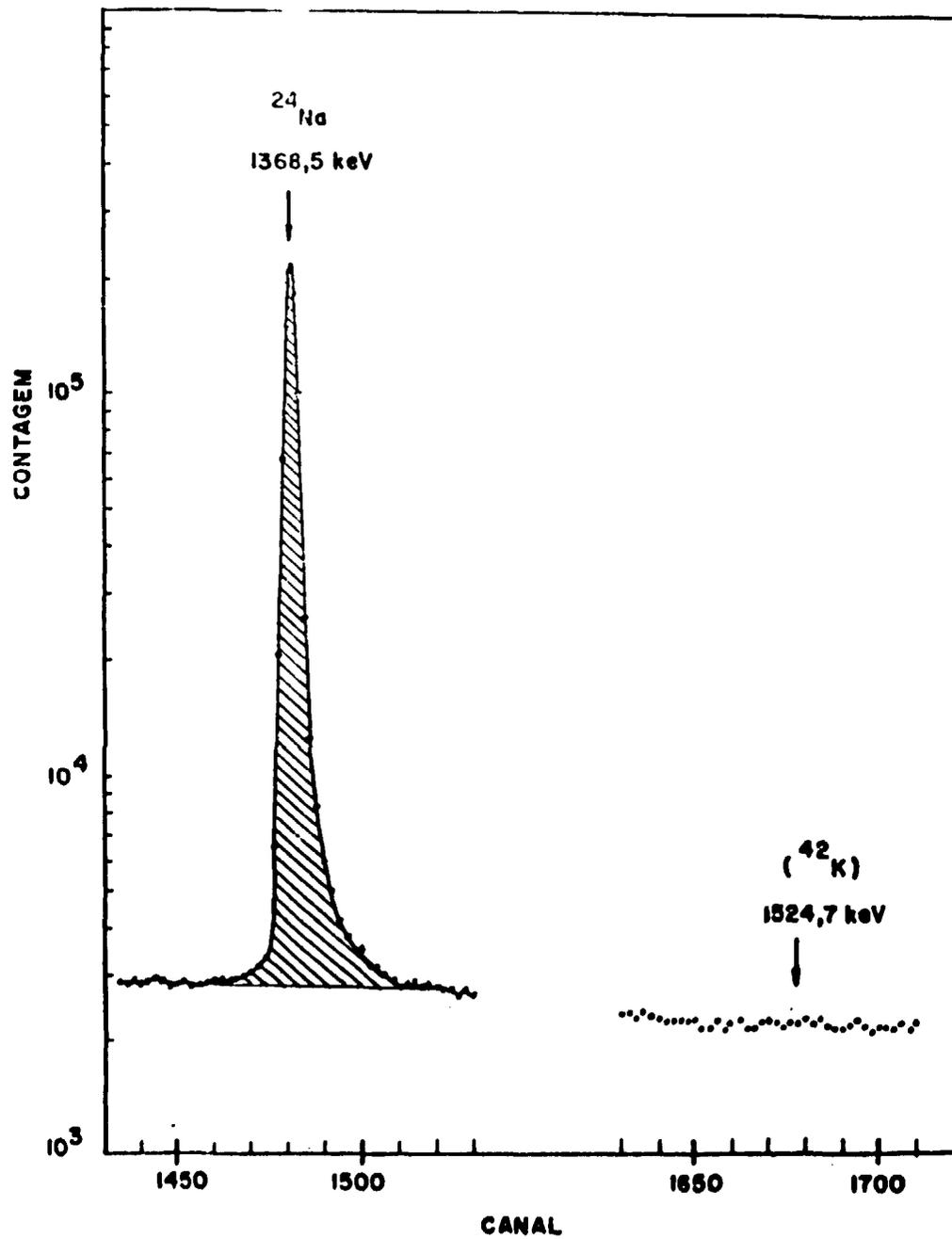


Figura 3.19 - Medida de ^{24}Na em Detector de Ge-Li para a Verificação de Traços de ^{42}K

Tabela III.3.6b

Atividades de ^{24}Na : Solução I

Fonte	Atividade Específica $\times 10^4$ Bq/g	Erro Estat. $\times 10^{-2}$ (%)	Erro Sist. $\times 10^{-2}$ (%)
1	9,84783	1,38	3,09
2	9,85112	4,18	3,17
3	9,85014	5,66	3,15
4	9,82948	7,91	4,92
5	9,83038	5,22	5,24
6	9,81879	1,02	5,49
7	9,82691	10,9	5,53
8	9,82248	5,99	4,78
9	9,84194	8,48	4,78
MP = $(9,8302 \pm 0,0046) \times 10^4$ Bq/g ; NP = $(9,8351 \pm 0,0087) \times 10^4$ Bq/g			

MP = média ponderada

NP = média não ponderada

Tabela III.3.6c

Atividades de ^{24}Na : Solução II

Fonte	Atividade Específica Bq/g $\times 10^5$	Erro Estat. $\times 10^{-1}$ (%)	Erro Sist. $\times 10^{-1}$ (%)
1	1,45497	1,53	1,49
2	1,45530	1,40	1,33
3	1,45620	0,41	0,74
4	1,46729	1,82	1,53
5	1,46032	1,06	1,48
6	1,45911	1,55	1,48
MP = $(1,4571 \pm 0,0011) \times 10^4$ Bq/g ; NP = $(1,4594 \pm 0,0017) \times 10^5$ Bq/g			

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Duas ampolas foram preenchidas, sendo a primeira com massa $3,262256 \text{ g} \pm 10\mu\text{g}$ (Solução II) e a segunda com massa $3,515473 \text{ g} \pm 10\mu\text{g}$ (Solução II).

Os resultados de $\Delta V/\Delta t$ para as 2 soluções estão na Tabela III.3.6d; f_N e F estão na Tabela III.3.6e.

Tabela III.3.6d

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{24}Na

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-2}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. SOL I	7,61024	0,094	0,07	1,1551
LU SOL II	12,2345	0,17	0,33	1,2019
C/BLIND. SOL I	7,65951	0,11	0,07	*
LU SOL II	12,3137	0,18	0,33	0,3080
C/BLIND. SOL I	7,54046	0,12	0,07	*
LU/CD SOL II	12,1223	0,14	0,33	0,3064

Tabela III.3.6e

 f_N e F para o ^{24}Na

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $V/S/Bq \times 10^{-7}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. SOL I	1,00170	0,051	2,37714	0,15
SOL II	0,99652	0,13	2,3762	0,35
C/BLIND. SOL I	1,00159	0,086	2,39229	0,18
LU SOL II	0,99641	0,12	2,39133	0,35
C/BLIND. SOL I	1,00397	0,11	2,36068	0,20
LU/CD SOL II	0,99878	0,093	2,35976	0,35

* Cálculo baseado nos dados da Sol. I (S/Blind. Lu) e na Sol. II (C/Blind. Lu e Lu/Cd). O desvio da média foi obtido por propagação de erros.

3.3.7 – ^{198}Au

a) Esquema de Decaimento

O ^{198}Au decai por emissão β^- em 3 ramos principais, dos quais o mais intenso é o de 961 keV (98,78%) que alimenta diretamente a transição de 411,8 keV do ^{198}Hg . Esta transição é a que mais interessa (99,79%) e é parcialmente convertida internamente. ($\alpha = 0,0446 \pm 0,0004^{(16)}$), vide Figura 3.20.

Tabela III.3.7a

Transição do ^{198}Au [16]

Tipo	Energia keV	Intensidade Absoluta
β_2^-	961,0 \pm 0,4	0,9878 \pm 0,0003
X_K	72,49	0,0275 \pm 0,0003
γ_1	411,80 \pm 0,01	0,9553 \pm 0,0005
γ_2	675,88 \pm 0,02	0,0101 \pm 0,0008
γ_3	1087,70 \pm 0,03	0,0018 \pm 0,0002

A transição de elétrons Auger e elétrons de conversão foram desprezadas para a contribuição da corrente na Câmara de Ionização pela baixa intensidade ($\leq 4\%$), o mesmo ocorrendo com os ramos β_1^- e β_3^- ($\leq 1\%$).

O valor da Meia-Vida adotado foi (2,696 \pm 0,002) dias⁽¹²⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{198}Au

Foi feita pelo método de Coincidências $4\pi\beta^- \gamma$, discriminando os cintiladores NaI(Tl) para detectar apenas os pulsos do fotopico de 411,8 keV.

A solução fornecida pela C.P.M.R. (I.E.A.) possui $\sim 9,5 \mu\text{Ci/g}$ por ocasião da medida.

As atividades absolutas das fontes preparadas com esta solução estão na Tabela III.3.7b. A incerteza sistemática para o valor extrapolado da atividade é estimada em $\sim 0,04\%$.

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Uma ampola, contendo 3,555953 g $\pm 10 \mu\text{g}$ foi medida e os resultados estão nas Tabelas III.3.7c, d.

Tabela III.3.7b

Atividades do ^{198}Au

Fonte	Atividade Específica Bq/g x 10^5	Erro Estat. x 10^{-2} (%)	Erro Sist. x 10^{-2} (%)
1	5,5113	4,13	3,15
2	3,5215	1,92	2,56
3	3,5154	2,97	3,35
4	3,5107	2,73	3,35
5	3,5108	1,28	3,35
6	3,5127	2,42	3,46
7	3,5184	1,05	3,19
MP = $(3,5155 \pm 0,0016) \times 10^5$ Bq/g ; NP = $(3,5144 \pm 0,0016) \times 10^5$ Bq/g			

Tabela III.3.7c

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{189}Au

	$\Delta V/\Delta t$ V/S x 10^{-2}	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. V/S x 10^{-3}
S/BLIND. -LU	4,1055	0,062	0,02	1,1274
C/BLIND. -LU	3,1246	0,053	0,05	0,3150
C/BLIND. -LU/CD	3,9111	0,10	0,05	0,2960

Tabela III.3.7d

 f_N e F para o ^{198}Au

	f_N	Desvio em f_N (%)	F V/S/Bq x 10^{-6}	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	0,99732	0,046	3,2753	0,090
C/BLIND. -LU	1,00105	0,061	3,3029	0,093
C/BLIND. -LU/CD	1,00343	0,091	3,1393	0,14

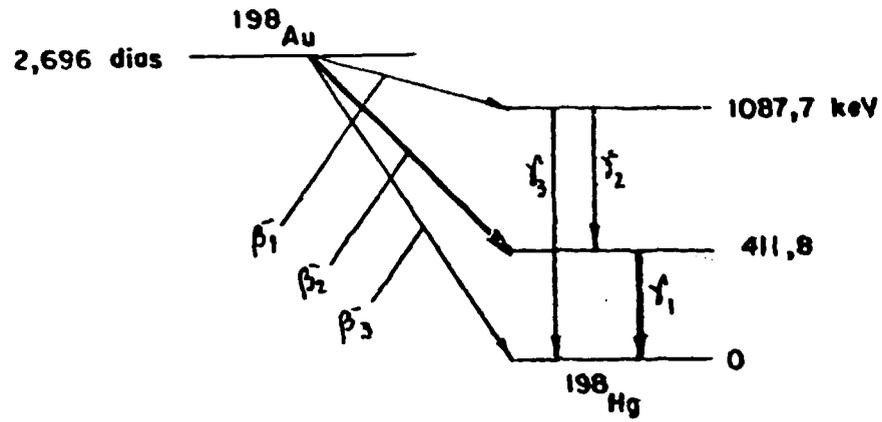


Figura 3.20 - Esquema de Decaiemento do ^{198}Au [16]

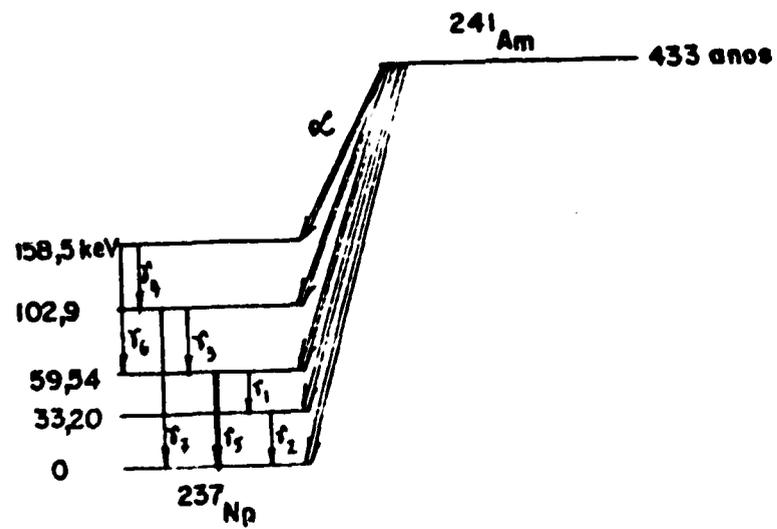


Figura 3.21 - Esquema de Decaiemento do ^{241}Am [16]

3.3.8 – ^{241}Am

a) Esquema de Decaimento

O ^{241}Am decai por emissão α , principalmente ao nível de 59,54 keV do ^{237}Np . A transição gama mais intensa é a de 59,54 keV (Figura 3.21).

A Tabela III.3.8a mostra os parâmetros principais do decaimento do ^{241}Am .

Tabela III.3.8a

Transições do ^{241}Am [16]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
X_L	13,94	0,29 ± 0,01
γ_1	26,35	0,025 ± 0,002
γ_2	33,20	0,0014 ± 0,0004
γ_3	43,42	0,00073 ± 0,00007
γ_4	55,54	0,00020 ± 0,00002
γ_5	59,54	0,365 ± 0,002 [19]
γ_6	98,97	0,00021 ± 0,00002
X_K	103,48	0,0008 ± 0,0002
γ_8	125,3	< 1 x 10 ⁻⁴

Para a corrente da Câmara de Ionização foram consideradas desprezíveis as contribuições das transições X_L , γ_1 , γ_2 , γ_3 , γ_4 e γ_8 , por motivo de baixa intensidade.

A radiação de "Bremstrahlung" produzido pelas partículas α foi considerado desprezível.

O valor de Meia-Vida adotado foi (433 ± 2) anos⁽¹⁶⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{241}Am

Foi feita pelo Método $4\pi\alpha$, detectando os alfas no detector proporcional com eficiência ~ 100%. Para verificar a contribuição das contagens abaixo do nível do ruído, foi feita extrapolação do espectro alfa em analisador multicanel e constatou-se que a perda em contagem nesta região foi < 0,2%.

Da solução de ^{241}Am , obtida da International Atomic Energy Agency (IAEA), foram feitas 2 diluições. As atividades das fontes preparadas destas diluições estão nas Tabelas III.3.8b, c.

Tabela III.3.8b

Atividades de ^{241}Am ; Dil. I, $F_d = 16,366232$

Fonte	Atividade Bq/g x 10^4	Erro Estat. x 10^{-2} (%)
1	5,6454	5,09
2	5,5894	2,17
3	5,6778	6,54
4	5,6721	4,60
NP = $(5,646 \pm 0,020) \times 10^4$ Bq/g		

NP = média não ponderada

Tabela III.3.8c

Diluição II $F_d = 16,030961$

Fonte	Atividade Bq/g x 10^4	Erro Estat. x 10^{-2} (%)
1	5,8147	2,12
2	5,8182	6,73
3	5,7521	9,63
4	5,7713	4,78
NP = $(5,789 \pm 0,016) \times 10^4$ Bq/g		

NP = média não ponderada

A Média Não-Ponderada obtida para a solução original foi:

$$(9,260 \pm 0,019) \times 10^5 \text{ Bq/g}$$

A incerteza sistemática devido à auto absorção é estimada em $\leq 0,2\%$.

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Uma ampola contendo $3,434324 \pm 10 \mu\text{g}$ foi medida e os resultados estão nas Tabelas III.3.8d, e.

Tabela III.3.8d

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{241}Am

	$\Delta V/\Delta t$ $V/S \times 10^{-3}$	Desvio da Média (%)	Incerteza Sistemática (%)	R.F. $V/S \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	8,0491	0,062	0,1	1,0619
C/BLIND. -LU	8,1062	0,23	0,1	0,3045
C/BLIND. -LU/CD	5,1517	0,20	0,1	0,3040

Tabela III.3.8e

 f_N e F para o ^{241}Am

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $V/S/Bq \times 10^{-9}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	1,00581	0,11	2,5457	0,31
C/BLIND. -LU	0,99750	0,10	2,5426	0,30
C/BLIND. -LU/CD	0,097356	0,18	0,15770	0,34

3.3.9 - ^{42}K

a) Esquema de Decaimento

O ^{42}K decai por β^- em vários ramos, sendo que o mais intenso (82,1%) decai para o estado fundamental do ^{42}Ca . As características deste nuclídeo que dificultam a calibração na Câmara de Ionização são as baixas intensidades dos seus gamas, o que faz com que elas não sejam determinadas com boa precisão. Além disso a alta energia e intensidades dos ramos β^- aliadas à baixa intensidade dos gamas faz com que seja relativamente grande a correção para efeito de "Bremstrahlung" na Câmara de Ionização.

O esquema do ^{42}K está na Figura 3.22. As transições principais nas Tabelas III.3.9a, b.

Tabela III.3.9a

Transições β^- Principais do ^{42}K [7]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
β_4^-	1995 \pm 6	0,176 \pm 0,005
β_6^-	3520 \pm 4	0,821 \pm 0,005

Tabela III.3.9b

Transições γ do ^{42}K [14]

	Energia KeV	Intensidade Absoluta
γ_1	1524,6 \pm 0,3	100
γ_2	312,6 \pm 0,3	1,86 \pm 0,11
γ_3	2424,3 \pm 0,7	0,110 \pm 0,016
γ_4	899,7 \pm 0,4	0,285 \pm 0,014
γ_5	1228,0 \pm 1,5	0,013 \pm 0,0006
γ_6	1320,8 \pm 1,0	0,228 \pm 0,0022
γ_7	1021,2 \pm 0,9	0,111 \pm 0,008
γ_8	692,0 \pm 0,8	0,018 \pm 0,004

Para obter a intensidade absoluta dos gamas deve-se multiplicar os dados da Tabela III.3.9b pelo fator:

$$(1,79 \pm 0,05) \times 10^{-3} \quad [16]$$

que corresponde à relação entre intensidade beta total e do γ_1 , isto é, $\Sigma\beta/\gamma_1$.

O valor da Meia-Vida adotado foi: (12,360 \pm 0,003) horas⁽⁷⁾.

b) Medida Absoluta da Atividade da Solução de ^{42}K

A solução de ^{42}K fornecida pela C.P.M.R. (IEA) continha traços de ^{24}Na como foi verificado por medidas com detector Ge-Li. O espectro obtido é apresentado na Figura 3.23. Uma interpolação logarítmica da eficiência do detector Ge-Li em função da energia, utilizando os dados do item 3.3.6, relativos ao ^{24}Na , em intensidade gama foi de:

0,145 %

Considerando as intensidades absolutas dos picos de 1368 keV (^{24}Na) e 1524,6 (^{42}K), determinou-se a relação entre as taxas de desintegração:

$$A(^{24}\text{Na}) = 0,026 \% A(^{42}\text{K})$$

A partir destes dados pode-se deduzir as contribuições devidas ao ^{24}Na na Atividade Absoluta e em $\Delta V/\Delta t$ medidos para o ^{42}K .

Os resultados das medidas de atividades da solução, já considerando o aspecto acima são apresentados na Tabela III.3.9c.

Tabela III.3.9c

Atividades de ^{42}K

Fonte	Atividade Específica Bq/g x 10 ⁵	Erro Estat. x 10 ⁻¹ (%)	Erro Sist. x 10 ⁻¹ (%)
1	3,8660	0,92	- *
2	3,8494	0,27	- *
3	3,8641	0,94	- *
4	3,8553	0,64	- *
5	3,8500	0,98	1,29
6	3,8505	0,79	1,17
7	3,8586	0,39	- *
8	3,8504	2,63	1,21
9	3,8678	3,11	1,42
10	3,8733	1,28	- *
MP = (3,8585 ± 0,0030) x 10 ⁵ Bq/g ; NP = (3,8540 ± 0,0020) x 10 ⁵ Bq/g			

* Média de 2 medidas

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Uma ampola de 3,293033 g ± 10 µg foi medida e os valores de $\Delta V/\Delta t$, descontando a contribuição do ^{24}Na , estão na Tabela III.3.9d; os valores para f_N e F estão na Tabela III.3.9e.

Tabela III.3.9d

 $\Delta V/\Delta t$ para o ^{42}K

	$\Delta V/\Delta t$ $\times 10^{-3} \text{ V/S}$	Desvio de Média (%)	R.F. $\text{V/S} \times 10^{-3}$
S/BLIND. -LU	2,3433	0,16	1,230
C/BLIND. -LU	2,3538	0,13	0,3080
C/BLIND. -LU/CD	2,2974	0,23	0,3080

Tabela III.3.9e

 f_N e F para o ^{42}K

	f_N	Desvio em f_N (%)	F $\text{V/S/Bq} \times 10^{-8}$	Incerteza em F (%)
S/BLIND. -LU	1,0015	0,036	1,8794	0,19
C/BLIND. -LU	1,0050	0,078	1,8875	0,18
C/BLIND. -LU/CD	1,0074	0,10	1,8488	0,27

3.3.10 – Medida de Emissores β Puros

Foram medidos os núclídeos ^{35}S , ^{204}Tl e ^{32}P , com o propósito de estimar a contribuição da "Bremsstrahlung" na corrente da Câmara de Ionização.

a) Transições dos Radionuclídeos

As transições destes radionuclídeos são apresentadas na Tabela III.3.10a.

Tabela III.3.10a

Transições de Emissores β Puros [16]

Nuclídeo	Tipo de Transição	Energia keV	Intensidade Absoluta
^{35}S	β^-	167,7	1,0
^{204}Tl	β^-	763,4	$0,9746 \pm 0,0006$
	Raio-X	72,5	$0,0147 \pm 0,0003$
^{32}P	β^-	1710,1	1,0

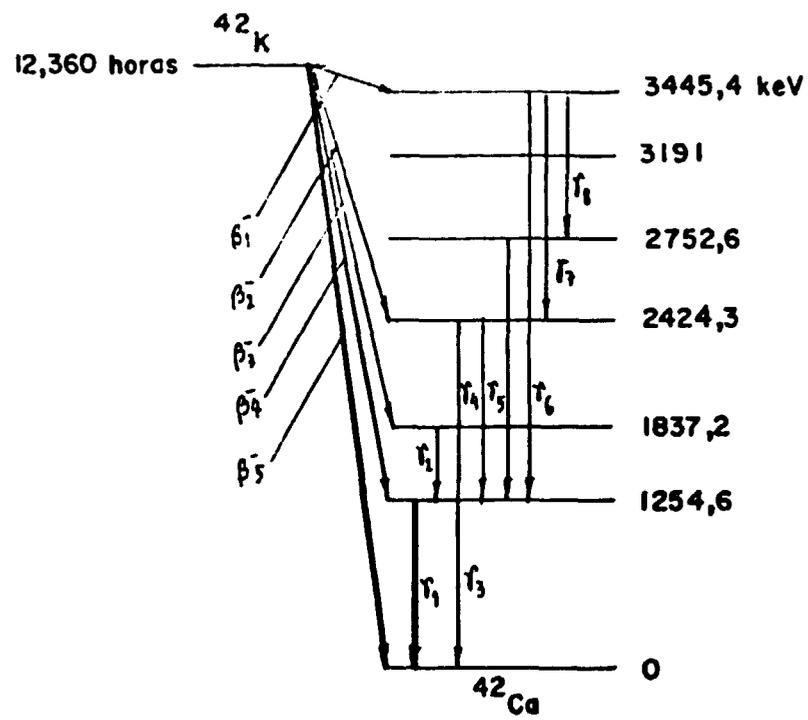


Figura 3.22 - Esquema de Decaimento do ^{42}K [16]

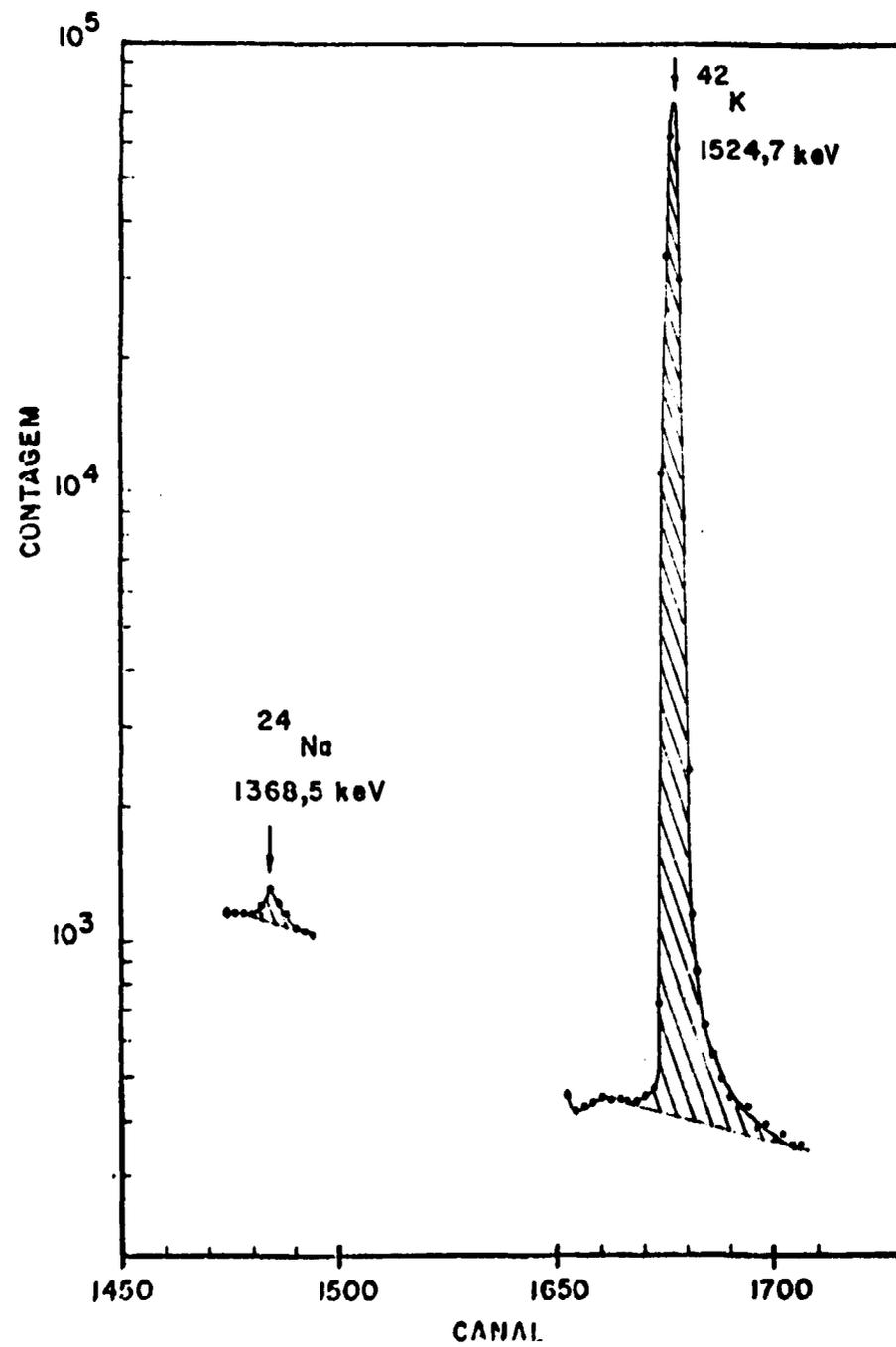


Figura 3.23 - Medidas de ^{42}K em Detector de Ge-Li para a Verificação de Traços de ^{24}Na

Os valores das Meia-Vidas adotados foram⁽¹⁸⁾:

^{35}S	$87,24 \pm 0,17$	dias
^{204}Tl	$3,78 \pm 0,02$	anos
^{32}P	$14,26 \pm 0,04$	dias

As transições não incluídas na Tabela III.3.10a foram consideradas negligenciáveis em relação à corrente na Câmara de Ionização.

b) Medida Absoluta em Sistema $4\pi\text{-}\beta$

Da solução de cada radionuclídeo foram feitas 2 diluições; as atividades obtidas de fontes preparadas a partir destas diluições estão nas Tabelas III.3.10b, c, d.

Estas diluições foram necessárias, devido a resposta para "Bremsstrahlung" ser muito baixa na Câmara de Ionização, obrigando a se utilizar atividades altas para a solução da ampola.

As incertezas sistemáticas para as medidas absolutas são: 10% (^{35}S), 5% (^{204}Tl) e 3% (^{32}P).

Tabela III.3.10b

Atividades de ^{35}S

Diluição I	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10^4	x 10^{-2} (%)
1	4,2033	5,6
2	4,0629	9,1
3	4,1199	6,8
$N_p = (4,128 \pm 0,040) \times 10^4$ Bq/g $F_{dI} = 25,976108$		
Diluição II	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10^4	x 10^{-2} (%)
1	4,1887	3,1
2	4,3728	3,1
3	4,1864	2,9
$N_p = (4,249 \pm 0,061) \times 10^4$ Bq/g $F_{dII} = 24,979650$		

Tabela III.3.10c
Atividades de ^{204}Tl

Diluição I	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10 ⁴	x 10 ⁻² (%)
1	9,470	4,1
2	9,414	4,6
3	9,474	3,7
4	9,461	2,2
5	9,496	2,4
NP = $(9,463 \pm 0,013) \times 10^4$ Bq/g FdI = 12,389367		
Diluição II	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10 ⁴	x 10 ⁻² (%)
1	9,309	5,8
2	9,236	2,3
3	9,263	4,7
4	9,229	9,9
5	9,322	11,6
NP = $(9,272 \pm 0,018) \times 10^4$ Bq/g FdII = 12,166464		

Tabela III.3.10d

Atividades de ^{32}P

Diluição I	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10 ⁴	x 10 ⁻² (%)
1	8,934	4,4
2	8,932	4,7
3	8,949	1,6
4	8,905	2,1
NP = (8,9308 ± 0,0091) x 10 ⁴ Bq/g Fdl = 83,176121		
Diluição II	Atividade Específica	Erro Estat.
Fonte	Bq/g x 10 ⁴	x 10 ⁻² (%)
1	8,494	7,4
2	8,496	2,7
3	8,499	2,9
4	8,518	6,1
NP = (8,5020 ± 0,0054) x 10 ⁴ Bq/g FdII = 78,967840		

Como média entre as duas diluições para cada solução, considerando os fatores de diluição (Fd), obtém-se as atividades específicas das soluções originais:

$$\begin{aligned}
 ^{35}\text{S} &: (1,07 \pm 0,11) \times 10^6 \text{ Bq/g} \\
 ^{204}\text{Tl} &: (1,150 \pm 0,058) \times 10^6 \text{ Bq/g} \\
 ^{32}\text{P} &: (7,07 \pm 0,21) \times 10^7 \text{ Bq/g}
 \end{aligned}$$

O desvio indicado é dado pela incerteza sistemática.

c) Medidas no Sistema de Câmara de Ionização

Por causa da baixa corrente produzida pela emissão β^- , mesmo para as altas atividades utilizadas, as medidas foram feitas com a blindagem em torno do detector, para minimizar a corrente de fundo. Não se procurou a normalização das medidas, pois esta acarreta uma incerteza $\leq 0,7\%$, o que corresponde, em geral, a apenas $\leq 0,005\%$ na correção para emissores $\beta\text{-}\gamma$.

As massas de solução nas ampolas foram: 3,398679g (^{35}S); 3,375325g (^{204}Tl) e 3,433697g (^{32}P), afetadas de um erro de $\pm 10\mu\text{g}$.

Os resultados de $\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ para os emissores β^- -puros estão relacionados na Tabela III.3.10e, para os suportes sem Cádmió e com Cádmió. O valor da resposta na condição S/BLIND.-LU pode ser estimado pelo valor na condição C/BLIND.-LU, pois o erro devido ao retroespalhamento é pequeno, quando comparado com a incerteza sistemática na Atividade.

Tabela III.3.11

Atividades Máximas Mensuráveis

Radionuclídeo	$A_{\text{máx}}$ (mCi)	Radionuclídeo	$A_{\text{máx}}$ (mCi)
^{241}Am	863	^{54}Mn	35,7
^{139}Ce	149	^{60}Co	13,0
^{198}Au	66	^{42}K	114
^{22}Na	13,8	^{24}Na	9,0
^{134}Cs	18,6		

Com os resultados experimentais desse capítulo (3), torna-se possível a determinação de atividades de outras soluções dos mesmos radionuclídeos apresentados (com exceção dos beta-puros) pelo Método Direto, utilizando o Fator de Calibração (vide item 2.3.2e).

Um dado adicional que se obtém a partir do Fator de Calibração (F) e da corrente máxima (vide item 3.1.5) é o valor da atividade máxima mensurável ($A_{\text{máx}}$). Esta atividade, calculada pela equação 2.8, é apresentada na Tabela III.3.11.

Tabela III.3.10e

Valores de $\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ para Emissores β^- Puros

Radionuclídeo	Suporte	$\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ V/S	Desvio da Média (%)
^{35}S	Sem CD	$3,24 \times 10^{-5}$	23
	Com CD	Não Detectável	
^{204}Tl	Sem CD	$9,839 \times 10^{-4}$	0,72
	Com CD	$2,314 \times 10^{-4}$	0,46
^{32}P	Sem CD	$7,706 \times 10^{-3}$	0,10
	Com CD	$5,032 \times 10^{-3}$	0,25

No capítulo seguinte serão determinadas as curvas de Eficiência Relativa Gama e Beta, a partir dos valores de $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$, Atividade e fatores de normalização apresentados no item 3.3. Com estas curvas pode-se determinar a atividade de outros radionuclídeos não previamente padronizados.

CAPÍTULO 4

DETERMINAÇÃO DAS CURVAS DE EFICIÊNCIA RELATIVA EM FUNÇÃO DA ENERGIA

4.1 – Introdução

Como já foi citado anteriormente, a padronização de radionuclídeos que estejam relacionados no Capítulo 3 é imediata, bastando: a medida de $\langle \Delta V/\Delta t \rangle$ para a amostra em questão; idem, para o monitor e; a utilização do fator de calibração (F).

Para radionuclídeos β - γ para os quais não se dispõe de padrão, é necessário utilizar curvas de eficiência relativa gama (ϵ_γ) e beta (ϵ_β) em função da energia. Nesse caso, a atividade de uma amostra desconhecida é dada por (item 2.3.2.f).

$$A_x = \frac{(f_N \langle \Delta V/\Delta t \rangle)_x}{\sum_{i=1}^n (\epsilon_\gamma I_\gamma)_i + \sum_{j=1}^m (\epsilon_\beta I_\beta)_j} \quad (4.1)$$

onde:

$\epsilon_{\gamma i}$ = eficiência relativa gama para o i-ésimo gama.

$I_{\gamma i}$ = intensidade gama absoluta para o i-ésimo gama (apresentadas no Cap. 3).

$\epsilon_{\beta j}$ = eficiência relativa beta para o j-ésimo beta.

$I_{\beta j}$ = intensidade para o j-ésimo beta (Cap. 3).

n e m = são respectivamente o número de transições gama e beta do radionuclídeo.

A_x = atividade desconhecida para a solução da ampola.

As curvas de ϵ_γ foram construídas em três diferentes condições:

- i) Curva A: detector desprovido de blindagem; suporte de Lucite (2 mm).
- ii) Curva B: detector blindado; suporte de Lucite (2 mm).
- iii) Curva C: detector blindado; suporte de Lucite (2 mm) revestido com Cádmio (0,7 mm).

As curvas de ϵ_β foram construídas apenas nas condições dos itens ii) e iii) citados, por motivo da corrente de fundo ser alta sem a blindagem. Os valores para a condição i) foram estimados a partir dos dados da condição ii).

4.2 – Método Utilizado para a Obtenção das Curvas de Eficiência Relativa Gama (ϵ_γ)

Para se obter um ponto desta curva, correspondente à eficiência relativa gama (ϵ_γ) para uma dada energia (E_γ), foi necessário um processo iterativo. A partir dos resultados experimentais apresentados no Cap. 3, foram seguidas várias etapas, a saber: primeiramente foi construída as curvas de eficiência relativa beta (ϵ_β) em função da energia beta máxima ($E_{\beta máx}$). Dessas curvas foi feita a

correção devida à resposta da Câmara de Ionização para a emissão β^- de radionuclídeos emissores $\beta\text{-}\gamma$. A seguir foram determinadas curvas de eficiência relativa gama preliminares, utilizando radionuclídeos de esquema de decaimento simples. Finalmente foram construídas as curvas de eficiência relativa gama completas (ϵ_γ), determinando-se a eficiência para cada uma das energias gama dos radionuclídeos considerados.

Cada uma dessas etapas serão descritas a seguir:

4.2.1 – Construção das Curvas de Eficiência Relativa Beta (ϵ_β) em Função da Energia Beta Máxima ($E_{\beta\text{máx}}$)

Os radionuclídeos escolhidos para estas curvas foram: ^{35}S (167,7 keV), ^{204}Tl (763,4 keV) e ^{32}P (1710,1 keV), com o propósito de determinar a resposta da Câmara de Ionização em diferentes energias beta máximas. Obtém-se a eficiência beta relativa (ϵ_β) para o ^{35}S e ^{32}P , rearranjando a eq. 4.1 e considerando que ambos são beta puros com um único ramo beta:

$$\epsilon_\beta = \frac{f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle}{A I_\beta} \quad (4.2)$$

O ^{204}Tl decai parcialmente por Captura de Elétrons e portanto há produção de raio-X (72,5 keV) que deve ser considerada. Nesse caso a eficiência beta é dada por:

$$\epsilon_\beta = \frac{f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle - A \epsilon_x I_x}{A I_\beta} \quad (4.3)$$

onde ϵ_x e I_x são as eficiência e intensidade absoluta para o raio-X de 72,5 keV.

Como, em geral, a eficiência da Câmara para beta é pelo menos 200 vezes menor que para gamas, uma estimativa de ϵ_x com 5% de erro é suficiente para atingir uma incerteza $\leq 0,03\%$ na correção devida à emissão β de radionuclídeos $\beta\text{-}\gamma$. Isso foi feito estimando-se ϵ_x por uma interpolação de ϵ_γ , onde não se considerou a contribuição dos betas.

Os valores obtidos para ϵ_x foram:

– suporte sem Cádmio: $\epsilon_x = 8,61 \times 10^{-9}$ V/quantum

– suporte com Cádmio: $\epsilon_x = 2,58 \times 10^{-9}$ V/quantum

Os resultados de ϵ_β para os três radionuclídeos (^{35}S , ^{204}Tl e ^{32}P) estão apresentados nas Tabelas IV.2.1.a e IV.2.1.b. e na Figura 4.1.

Tabela IV.2.1.a

Valores de ϵ_β ; Suporte sem Cádmio

Radionuclídeo	Energia $\beta_{\text{máx}}$ keV	$\epsilon_\beta \times 10^{-10}$ V/Beta	Incerteza em ϵ_β (%)
^{35}S	167,7	0,089	27
^{204}Tl	763,4	1,303	7
^{32}P	1710,1	3,176	3

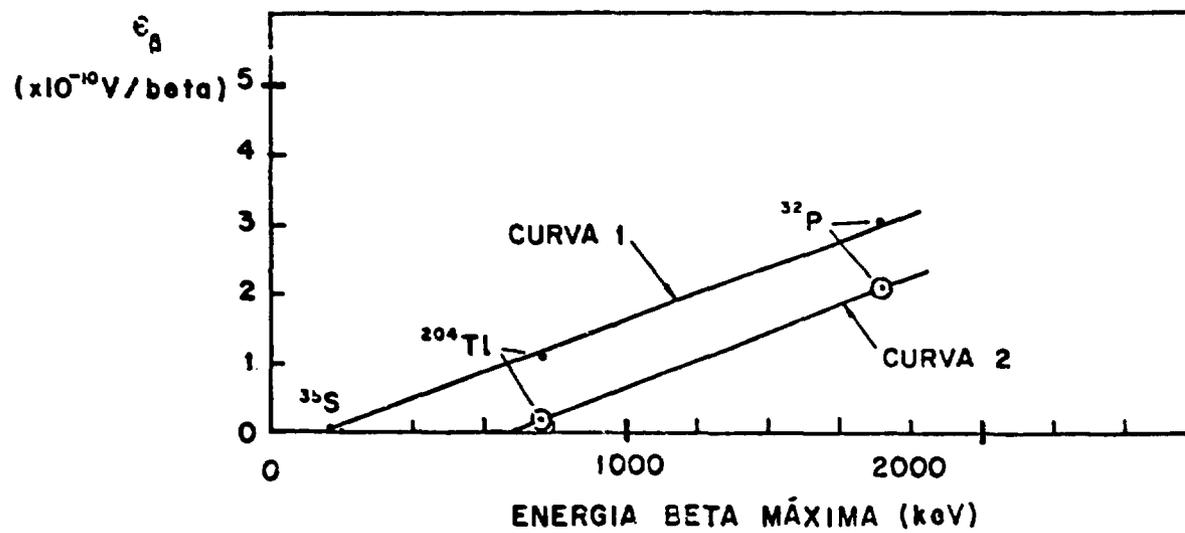


Figura 4.1 - Curvas de Eficiência Relativa Beta.
 Curva 1: suporte de lucite (2 mm)
 Curva 2: suporte de lucite envolvido em Cádmi o (0,7 mm)

Tabela IV.2.1.b

Valores de ϵ_β ; Suporte com Cádmi

Radionuclídeo	Energia $\beta_{\text{máx}}$ keV	$\epsilon_\beta \times 10^{-10}$ V/Beta	Incerteza em ϵ_β (%)
^{204}Tl	763,4	0,223	10
^{32}P	1710,1	2,074	3

Um ajuste de reta, por mínimos quadrados, para energias β até o ^{32}P (1710,1 keV), forneceu os seguintes valores para os coeficientes:

$$\epsilon(\text{eficiência } \beta) = a E (\text{energia } \beta_{\text{máx}}) + b$$

$$\text{SEM CD} \quad a = (1,99 \pm 0,01) \times 10^{-13} \quad b = (-2,3 \pm 0,1) \times 10^{-11}$$

$$\text{COM CD} \quad a = 1,95 \times 10^{-13} \quad b = -1,27 \times 10^{-10}$$

4.2.2 – Construção da Curva de Eficiência Relativa Gama (ϵ_γ)

Para obter uma relação analítica entre a eficiência relativa gama (ϵ_γ) e a energia gama (E_γ) foi adotada a seguinte expressão:

$$\log \epsilon_\gamma(E_\gamma) = \sum_{i=0}^n a_i (\log E_\gamma)^i \quad (4.4)$$

onde

ϵ_γ = eficiência relativa gama para a energia E_γ em Volt/gama emitido (Volt/quantum).

E_γ = energia gama em keV.

a_i = coeficientes do polinômio, obtidos por ajuste por mínimos quadrados.

n = grau máximo do polinômio, escolhido de modo a tornar o erro entre o valor experimental e o valor ajustado menor que um certo valor prefixado.

Este tipo de função foi escolhido por apresentar os pontos experimentais numa distribuição mais uniforme. Foram feitos ajustes polinomiais para a escala Linear-Linear e observou-se irregularidades em regiões onde os pontos experimentais estavam mais distanciados entre si. Goodier⁽¹¹⁾ adota um ajuste polinomial para a escala Linear-Linear, porém numa faixa de energias gamas mais restrita (54 a 1300 keV) e com um número maior de pontos (doze).

Como quase a totalidade dos radionuclídeos calibrados não são monoenergéticos, foi feito um processo iterativo, partindo-se inicialmente de radionuclídeos de esquema de decaimento simples, considerando apenas o gama principal ou a energia gama média⁽¹¹⁾.

Para o suporte sem Cádmiu foram utilizados inicialmente o ^{241}Am , ^{198}Au , ^{54}Mn e ^{60}Co e para o Suporte com Cádmiu o ^{139}Ce , ^{198}Au , ^{54}Mn e ^{60}Co . Neste último caso desconsiderou-se o ^{241}Am por apresentar uma atenuação no Cádmiu muito acentuada, alterando substancialmente o comportamento com relação aos outros pontos da Curva; o ^{139}Ce foi então considerado, uma vez que nesse caso (suporte com Cádmiu) a contribuição do Raio-X de 34,1 keV se torna desprezível.

A relação para a eficiência relativa gama (ϵ_γ) para ambos os casos citados é dada por:

$$\epsilon_\gamma = \frac{f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle_T - \langle \Delta V / \Delta t \rangle_\beta}{A I_\beta} \quad (4.5)$$

onde

$$\langle \Delta V / \Delta t \rangle_T = \langle \Delta V / \Delta t \rangle \text{ total (considerando todos os gamas e betas)}$$

f_N = fator de normalização

$$\langle \Delta V / \Delta t \rangle_\beta = \langle \Delta V / \Delta t \rangle \text{ para a radiação beta, obtida da curva para radionuclídeos beta puros.}$$

A = atividade da solução na ampola (B_q)

I_γ = intensidade absoluta do gama principal

onde o valor $\langle \Delta V / \Delta t \rangle_\beta$ pode ser escrito como:

$$\langle \Delta V / \Delta t \rangle_\beta = A \sum_{i=1}^m (\epsilon_{\beta_i} I_{\beta_i}) \quad (4.6)$$

onde

ϵ_{β_i} e I_{β_i} são as eficiências relativas e intensidades absolutas do i -ésimo ramo beta.

m = número de ramos beta.

Os valores de ϵ_γ obtidos para a curva inicial são apresentados nas Tabelas IV.2.2.a, b, c.

Tabela IV.2.2.a

Curva (A) Inicial para Eficiência Gama

Nuclídeo	Energia (keV)	$\epsilon_{\gamma \text{exp.}}$ (V/quantum)	$\epsilon_{\gamma \text{te}}$
^{241}Am	59,54	$6,974 \times 10^{-9}$	$6,973 \times 10^{-9}$
^{198}Au	411,80	$3,4111 \times 10^{-8}$	$3,4155 \times 10^{-8}$
^{54}Mn	834,81	$6,0458 \times 10^{-8}$	$6,0306 \times 10^{-8}$
^{60}Co	1252,90	$8,3238 \times 10^{-8}$	$8,3353 \times 10^{-8}$

Tabela IV.2.2.b

Curva (B) Inicial para Eficiência Gama

Nuclídeo	Energia (keV)	$\epsilon_{\gamma \text{exp.}}$ (V/quantum)	$\epsilon_{\gamma a}$
^{241}Am	59,54	$6,983 \times 10^{-9}$	$6,983 \times 10^{-9}$
^{198}Au	411,80	$3,4400 \times 10^{-8}$	$3,4411 \times 10^{-8}$
^{54}Mn	834,81	$6,0624 \times 10^{-8}$	$6,0588 \times 10^{-8}$
^{60}Co	1252,90	$8,3464 \times 10^{-8}$	$8,3492 \times 10^{-8}$

Tabela IV.2.2.c

Curva (C) Inicial para Eficiência Gama

Nuclídeo	Energia (keV)	$\epsilon_{\gamma \text{exp.}}$ (V/quantum)	$\epsilon_{\gamma a}$
^{139}Ce	165,85	$1,3797 \times 10^{-8}$	$1,3820 \times 10^{-8}$
^{198}Au	411,80	$3,2799 \times 10^{-8}$	$3,2592 \times 10^{-8}$
^{54}Mn	834,81	$5,9045 \times 10^{-8}$	$5,9581 \times 10^{-8}$
^{60}Co	1252,90	$8,2539 \times 10^{-8}$	$8,2178 \times 10^{-8}$

Os valores de $\epsilon_{\gamma a}$ foram obtidos por um ajuste de parábola, pelo método dos mínimos quadrados. Não se utilizou um grau maior para o polinômio em virtude do pequeno número de pontos.

A partir dos coeficientes das parábolas ajustadas para as Curvas A e B, determinou-se o valor de ϵ_{γ} para o gama de 165,85 keV do ^{139}Ce , por interpolação, para estas duas curvas. Com o valor de ϵ_{γ} (165,85 keV) pode-se deduzir as eficiências para o Raio X de 34,1 keV do ^{139}Ce , utilizando a eq. 4.1:

$$A_x = \frac{f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle - A \epsilon_{\gamma} I_{\gamma}}{A I_x} \quad (4.7)$$

onde

ϵ_x e I_x são a eficiência e a Intensidade do raio X de 34,1 keV e

ϵ_{γ} e I_{γ} o mesmo, para o gama de 165,85 keV

Os resultados obtidos, utilizando este procedimento estão na Tabela IV.2.2.d.

Tabela IV.2.2.d

Eficiência Gama para o ^{139}Ce

Energia (keV)	Curva A	Curva B
34,1	$2,012 \times 10^{-9}$	$2,044 \times 10^{-9}$
165,85	$1,6273 \times 10^{-8}$	$1,6379 \times 10^{-8}$

Na Curva C, através da eficiência para o ^{241}Am (59,5 keV) pode-se estimar que a contribuição do raio X neste caso é menor que 0,1%, comprovando a efetividade do revestimento de Cádmio.

A seguir, utilizando-se um procedimento análogo, separou-se as contribuições dos gamas de 511,01 keV (aniquilação de pósitrons) e 1274,54 keV do ^{22}Na . A utilização do gama de aniquilação é justificada pelo curto alcance dos pósitrons do ^{22}Na , que faz com que todos se aniquilem dentro do volume do suporte da ampola, como sugerido por Taylor⁽¹⁸⁾. A eficiência em 511,01 keV foi obtida por uma equação análoga à eq. 4.7, utilizando-se a eficiência gama de 1274,54 keV, determinada por interpolação.

Utilizando a mesma técnica separou-se as contribuições dos gamas de 1173,22 e 1332,51 keV do ^{60}Co . As eficiências obtidas para o ^{22}Na e ^{60}Co estão na Tabela IV.2.2.e.

Tabela IV.2.2.e

Eficiência Gama para ^{22}Na e ^{60}Co

Nuclídeo	Energia (keV)	$\epsilon (\times 10^{-8} \text{ V/quantum})$		
		Curva A	Curva B	Curva C
^{22}Na	511,01	4,0335	4,0488	3,9124
	1274,54	8,4495	8,4623	8,3266
^{60}Co	1173,22	7,9026	7,9281	7,8516
	1332,51	8,7446	8,7624	8,6557

Após a subtração da contribuição dos betas do ^{24}Na , foi determinada a eficiência do gama de 2754,03 keV, utilizando o valor em 1368,54 keV obtido por extrapolação das curvas A, B, C, iniciais. Os valores de ϵ_γ para estas duas energias estão na Tabela IV.2.2.f.

Tabela IV.2.2.f

Eficiência Gama para o ^{24}Na

Energia (keV)	$\epsilon (\times 10^{-8} \text{ V/quantum})$		
	Curva A	Curva B	Curva C
1368,54	8,9405	8,9483	8,7916
2754,03	14,826	14,970	14,822

A subtração dos gamas de baixa intensidade do ^{198}Au foi feita, através da relação:

$$\epsilon'_{\gamma_0} = \frac{\epsilon_{\gamma_0} I_{\gamma_0} - \sum_{i=1}^{n-1} (\epsilon_{\gamma_i} I_{\gamma_i})}{I_{\gamma_0}}$$

onde

ϵ_{γ_0} = eficiência gama para 411,80 keV obtida pela estimativa inicial

$\epsilon_{\gamma_i} I_{\gamma_i}$ = eficiência e intensidade dos gamas pouco intensos

I_{γ_0} = intensidade para 411,80 keV

Os valores de ϵ'_{γ_0} para o ^{198}Au estão na Tabela IV.2.2.h. Esta tabela inclui também todas as outras eficiências já apresentadas, comparando-se com os valores de eficiência obtidos por ajuste por mínimos quadrados para um polinômio de grau 6. Foram efetuados dois ajustes, para ser possível a subtração dos gamas de baixa energia do ^{241}Am , de modo semelhante ao empregado para o ^{198}Au . As diferenças percentuais entre os valores experimentais ($\epsilon_{\gamma_{exp}}$) e os ajustados (ϵ_{γ_a}) são apresentadas na última coluna (Δ). Os coeficientes dos polinômios ajustados estão na Tabela IV.2.2.g.

As curvas de Eficiência Gama Relativa em função da Energia são apresentadas nas Figuras 4.2 e 4.3. As curvas A e B, graficamente, são praticamente coincidentes.

Tabela IV.2.2.g

Coeficientes do Ajuste Polinomial

Coeficientes	Curva A	Curva B	Curva C
a_0	$-1,0302057 \times 10^2$	$-1,0081086 \times 10^2$	$-3,9175900 \times 10^2$
a_1	$2,0746186 \times 10^2$	$2,0271062 \times 10^2$	$7,8106934 \times 10^2$
a_2	$-1,8747234 \times 10^2$	$1,8335704 \times 10^2$	$-6,5978669 \times 10^2$
a_3	$8,9397286 \times 10^1$	$8,7562576 \times 10^1$	$2,9565898 \times 10^2$
a_4	$-2,3664378 \times 10^1$	$-2,3220568 \times 10^1$	$-7,4036240 \times 10^1$
a_5	$3,3017373 \times 10$	$3,2465244$	$9,8226509$
a_6	$-1,8999142 \times 10^{-1}$	$-1,8722895 \times 10^{-1}$	$-5,3949593 \times 10^{-1}$

Tabela IV.2.2h

Eficiências Experimentais e Obtidas por Ajuste (V/quantum)

Curva A			
ϵ_{γ}	$\epsilon_{\gamma_{\text{exp.}}}$	ϵ_{γ_a}	$\Delta(\%)$
34,1	$2,0115 \times 10^{-9}$	$2,0115 \times 10^{-9}$	0,00
59,54	$6,9357 \times 10^{-9}$	$6,9360 \times 10^{-9}$	0,00
165,85	$1,6273 \times 10^{-8}$	$1,6270 \times 10^{-8}$	+0,02
411,80	$3,3191 \times 10^{-8}$	$3,3231 \times 10^{-8}$	-0,12
511,01	$4,0006 \times 10^{-8}$	$3,9963 \times 10^{-8}$	+0,11
834,81	$6,0458 \times 10^{-8}$	$6,0395 \times 10^{-8}$	+0,11
1173,22	$7,9026 \times 10^{-8}$	$7,9261 \times 10^{-8}$	-0,30
1274,54	$8,4495 \times 10^{-8}$	$8,4505 \times 10^{-8}$	-0,01
1332,51	$8,7446 \times 10^{-8}$	$8,7435 \times 10^{-8}$	+0,01
1368,54	$8,9405 \times 10^{-8}$	$8,9231 \times 10^{-8}$	+0,19
2754,03	$1,4826 \times 10^{-7}$	$1,4827 \times 10^{-7}$	-0,01
Curva B			
ϵ_{γ}	$\epsilon_{\gamma_{\text{exp.}}}$	ϵ_{γ_b}	$\Delta(\%)$
34,1	$2,0438 \times 10^{-9}$	$2,0438 \times 10^{-9}$	0,00
59,54	$6,9444 \times 10^{-9}$	$6,9442 \times 10^{-9}$	0,00
165,85	$1,6379 \times 10^{-8}$	$1,6391 \times 10^{-8}$	-0,01
411,80	$3,3481 \times 10^{-8}$	$3,3420 \times 10^{-8}$	+0,18
511,01	$4,0032 \times 10^{-8}$	$4,0139 \times 10^{-8}$	-0,27
834,81	$6,0624 \times 10^{-8}$	$6,0511 \times 10^{-8}$	+0,19
1173,22	$7,9281 \times 10^{-8}$	$7,9390 \times 10^{-8}$	-0,14
1274,54	$8,4623 \times 10^{-8}$	$8,4660 \times 10^{-8}$	-0,04
1332,51	$8,7624 \times 10^{-8}$	$8,7608 \times 10^{-8}$	+0,02
2754,03	$1,4970 \times 10^{-7}$	$1,4970 \times 10^{-7}$	0,00
Curva C			
ϵ_{γ}	$\epsilon_{\gamma_{\text{exp.}}}$	ϵ_{γ_c}	$\Delta(\%)$
59,54	$4,0990 \times 10^{-10}$	$4,0990 \times 10^{-10}$	0,00
165,85	$1,3797 \times 10^{-8}$	$1,3796 \times 10^{-8}$	+0,01
411,80	$3,2091 \times 10^{-8}$	$3,2130 \times 10^{-8}$	-0,12
511,01	$3,8829 \times 10^{-8}$	$3,8743 \times 10^{-8}$	+0,22
834,81	$5,9046 \times 10^{-8}$	$5,9203 \times 10^{-8}$	-0,27
1173,22	$7,8516 \times 10^{-8}$	$7,8194 \times 10^{-8}$	+0,41
1274,54	$8,3266 \times 10^{-8}$	$8,3439 \times 10^{-8}$	-0,21
1332,51	$8,6557 \times 10^{-8}$	$8,6326 \times 10^{-8}$	+0,23
1368,54	$8,7916 \times 10^{-8}$	$8,8162 \times 10^{-8}$	-0,27
2754,03	$1,4822 \times 10^{-7}$	$1,4821 \times 10^{-7}$	+0,01

 Δ = diferença percentual entre $\epsilon_{\gamma_{\text{exp.}}}$ e ϵ_{γ_a}

Com a determinação dos coeficientes polinomiais para as Curvas de Eficiência Relativa Gama do Sistema de Câmara de Ionização, atinge-se o segundo objetivo mais importante deste trabalho. O primeiro foi a determinação dos Fatores de Calibração para a obtenção da Atividade de soluções pelo Método Direto. Utilizando-se as Curvas de Eficiência Relativa pode-se agora determinar a atividade de Radionuclídeos pelo Método Indireto, partindo-se da medida da amostra na Câmara de Ionização e utilizando dados de intensidade absoluta, obtidos na Literatura.

A seguir serão discutidos os testes de consistência para verificar a exatidão das curvas de eficiência obtidas. Posteriormente serão abordados aspectos gerais sobre a exatidão na interpolação das curvas, para as diferentes faixas de energia gama consideradas.

4.3 – Testes de Consistência para as Curvas de Eficiência Relativa Obtidas

Serão descritos dois testes de consistência para as curvas de eficiência. As atividades obtidas pelo método absoluto (Cap.3) e pela Câmara de Ionização (eq. 4.1) serão comparadas para dois radionuclídeos polienergéticos.

Para isso, foram utilizados os radionuclídeos ^{134}Cs e ^{42}K . Estes dois foram os escolhidos pois sendo polienergéticos, necessitam de vários pontos de interpolação, em diferentes regiões da curva. Em particular o ^{42}K , possuindo betas de energia superior a 1700 keV e gamas de baixa intensidade, serve de um duplo teste, considerando também a curva de emissores β puros.

4.3.1 – ^{134}Cs

Como mostra a Tabela III.3.4.b o ^{134}Cs , além de emissor β , emite 11 gamas na faixa de 240 a 1370 keV (a contribuição do Raio X_K é desprezível), os mais intensos estando entre 550 a 800 keV.

A relação que dá a atividade da solução da ampola pode ser escrita como: (eq. 4.1)

$$A = \frac{f_N \langle \Delta V / \Delta t \rangle_T}{\sum_{i=1}^n (\epsilon_\gamma I_\gamma)_i + \sum_{i=1}^m (\epsilon_\beta I_\beta)_i}$$

onde

$$\langle \Delta V / \Delta t \rangle_T = \Delta V / \Delta t \text{ total}$$

$(\epsilon_\gamma I_\gamma)_i$ = eficiência e intensidade absoluta do i-ésimo gama.

$(\epsilon_\beta I_\beta)_i$ = idem, para o i-ésimo beta.

n,m = número de transições gama e beta, respectivamente.

$\langle \Delta V / \Delta t \rangle_T$ e f_N estão nas Tabelas III.3.4.e e III.3.4.f, respectivamente.

A Tabela IV.3.1 mostra os valores obtidos de $\sum \epsilon_\gamma I_\gamma$ e $\sum \epsilon_\beta I_\beta$ para as três curvas. Nas últimas colunas foram colocadas as atividades específicas obtidas em cada caso. O valor de $\Delta(\%)$ é a diferença percentual entre as Atividades nos Sistemas Absoluto e de Câmara de Ionização.

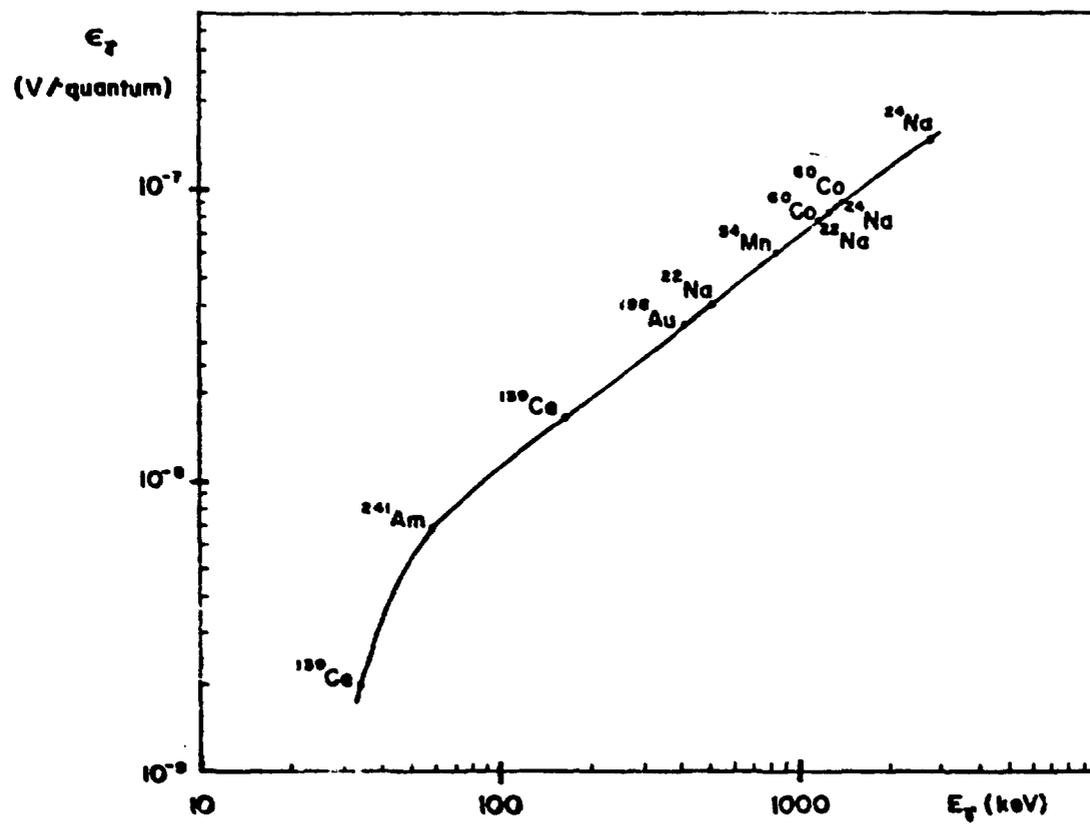


Figura 4.2 - Curvas A e B de Eficiência Relativa Gama. A Linha Sólida é a Curva Ajustada por um Polinômio de grau 6

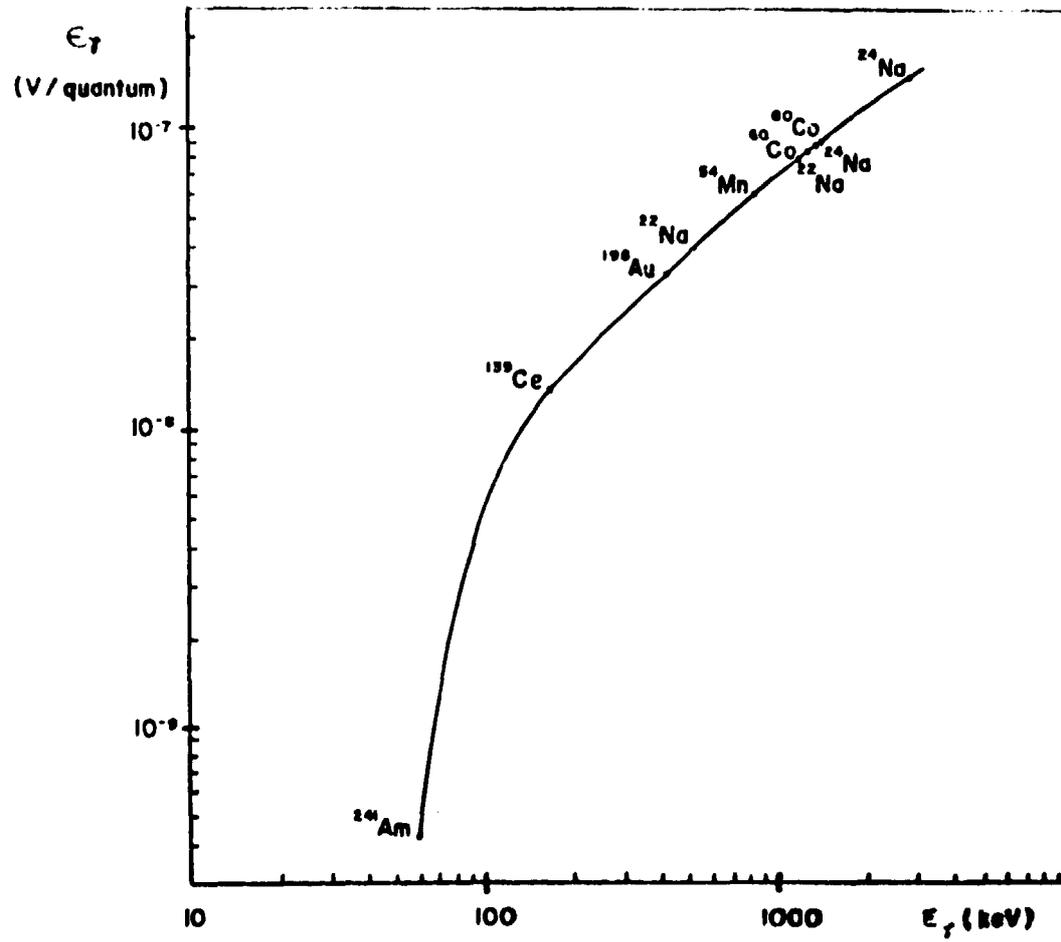


Figura 4.3 - Curva C de Eficiência Relativa Gama. A Linha Sólida é a Curva Ajustada por um Polinômio de grau 6

Tabela IV.3.1
Eficiências e Atividades do ^{134}Cs

Curva	(V/quantum)		Ativ. Espec. Bq/g	Incerteza na Ativ. (%)	Δ (%)
	$\Sigma \epsilon_{\gamma} I_{\gamma}$	$\Sigma \epsilon_{\beta} I_{\beta}$			
A	$1,1567 \times 10^{-7}$	$1,083 \times 10^{-10}$	$6,775 \times 10^4$	0,6	+0,21
B	$1,1587 \times 10^{-7}$	$1,083 \times 10^{-10}$	$6,737 \times 10^4$	0,6	-0,35
C	$1,1332 \times 10^{-7}$	$1,62 \times 10^{-12}$	$6,750 \times 10^4$	0,6	-0,16

A incerteza na atividade foi estimada considerando apenas os erros nas intensidades absolutas, e em $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$, pela relação:

$$\sigma_A (\%) = [\sigma_1^2 (\%) + \sigma_2^2 (\%)]^{1/2}$$

onde

$\sigma_1 (\%)$ é a incerteza em $\langle \Delta V / \Delta t \rangle$ (incluindo o Monitor)

$\sigma_2 (\%)$ é a incerteza em $\Sigma \epsilon_{\gamma} I_{\gamma} + \Sigma \epsilon_{\beta} I_{\beta}$, calculada a partir da incerteza em I_{γ} , que contribui com a maior parcela na incerteza $\sigma_A (\%)$.

Verifica-se um bom acordo entre a Medida Absoluta e o Sistema de Câmara de Ionização, com um desvio (Δ) menor que o estimado para a Atividade na Câmara de Ionização.

4.3.2 - ^{42}K

Como mostra as Tabelas III.3.9a, b, o ^{42}K emite 8 gamas de baixa intensidade (o mais intenso é de $\sim 18\%$) e 2 betas de alta energia (o mais intenso com $\sim 82\%$, de energia 3,5 MeV). Neste caso específico, a contribuição dos betas chega a 3,5% em relação aos gamas. Como a curva para emissores beta atinge apenas 1,7 MeV, é necessária uma extrapolação numa extensão maior da curva.

A Tabela IV.3.2 mostra os resultados obtidos para eficiências gama e beta, a última obtida por extrapolação linear. Nesta Tabela se incluem também as atividades específicas.

Tabela IV.3.2
Eficiências e Atividades do ^{42}K

Curva	(V/quantum)		Ativ. Espec. Bq/g	Incerteza na Ativ. (%)	Δ (%)
	$\Sigma \epsilon_{\gamma} I_{\gamma}$	$\Sigma \epsilon_{\beta} I_{\beta}$			
A	$1,7616 \times 10^{-8}$	$6,23 \times 10^{-10}$	$3,912 \times 10^{-5}$	2,8	+1,6
B	$1,7708 \times 10^{-8}$	$6,23 \times 10^{-10}$	$3,919 \times 10^{-5}$	2,8	+1,5
C	$1,7251 \times 10^{-8}$	$5,05 \times 10^{-10}$	$3,958 \times 10^{-5}$	2,8	+2,5

A maior contribuição na incerteza na Atividade Específica é dada pelo fator $\gamma_1/\Sigma\beta = 1,79 \times 10^{-3}$ (obtido da Literatura⁽¹⁶⁾) que é afetado de um erro de 2,8%. Como mostram os resultados, a concordância entre a Medida Absoluta e o Sistema de Câmara de Ionização é melhor que esta incerteza.

O erro maior para a Curva C pode ser atribuído à incerteza na interpolação.

4.3.3 – Observações sobre os Resultados para o ^{134}Cs e ^{42}K

O teste com o ^{134}Cs foi mais satisfatório, em relação ao ^{42}K , em virtude do conhecimento mais preciso nas intensidades gama absolutas (I_γ) para o ^{134}Cs .

Verificou-se em ambos os casos, que a exatidão na determinação das atividades ficou limitada essencialmente pela incerteza nas intensidades gamas absolutas. Evidentemente outras soluções de ^{134}Cs , e ^{42}K podem ser Calibradas independentemente das curvas, utilizando para isso o Fator de Calibração (F) apresentado no Cap. 3. Neste caso a exatidão é muito maior podendo atingir $\sim 0,3\%$ em ambos os casos, desde que sejam tomadas as precauções necessárias, principalmente com relação à contribuição de ^{24}Na na solução de ^{42}K .

Por outro lado, constatou-se que o ajuste não apresentou irregularidades sensíveis nas interpolações, o que poderia se esperar, considerando o grau elevado do ajuste e o número limitado de pontos nas curvas de calibração.

4.3.4 – Considerações sobre a Exatidão na Interpolação das Curvas de Calibração

Dependendo da faixa de energia gama a ser interpolada, pode-se estimar diferentes incertezas, a partir da exatidão com que foi determinada a atividade absoluta, $\Delta V/\Delta t$ e intensidades gamas dos pontos nas proximidades e da diferença entre o valor ajustado e o valor experimental para esses pontos.

Para as curvas A e B na faixa entre 1173 a 1368 keV, a incerteza é dada essencialmente pelo ^{60}Co e ^{24}Na , desse modo pode-se estimar uma incerteza entre 0,2 a 0,6%, dependendo da energia considerada. Para a curva C, estima-se entre 0,2 a 0,5%.

Na faixa entre 1368 a 2754 keV o erro pode ser igual ou maior, sendo da ordem de 0,2 a 0,7% nas proximidades destes pontos, para as três curvas. O teste com o ^{42}K serviu para eliminar a possibilidade de anomalias até a energia de 1524 keV, fornecendo um limite superior da incerteza em 2,8%, até esse ponto.

Na faixa entre 411 a 1173 keV, a proximidade entre os pontos e a precisão na atividade proporciona uma exatidão satisfatória, com uma incerteza entre 0,2 a 0,5%, para as três curvas.

Para as curvas A e B, o comportamento na escala Log-Log continua aproximadamente linear desde o ^{198}Au (411 keV) até o ^{241}Am (59,5 keV). Entre estes dois pontos efetivamente só há o ^{139}Ce (165,85 keV).

A incerteza estimada para o ^{241}Am (59,5 keV) é da ordem de 0,7% e para o ^{139}Ce (165,85 keV) é de 0,5%. Para pontos nas proximidades dessas duas energias as incertezas podem ser estimadas por essas porcentagens.

O comportamento da Curva C revela uma dependência abrupta da eficiência em função da energia até o ^{139}Ce ; a partir desse ponto, a variação com a energia é mais lenta. Portanto, não é aconselhável a utilização desta curva na região de baixas energias. Se possível é conveniente a sua utilização acima do ^{198}Au (411 keV), onde mais pontos diminuem a incerteza na interpolação.

Abaixo da energia do ^{241}Am (59,5 keV) as eficiências só podem ser estimadas pelas curvas A e B. No ponto de 34,1 keV do ^{139}Ce a incerteza estimada é da ordem de 7%. Embora a incerteza na interpolação seja de difícil estimativa nesta faixa, isso é parcialmente compensado, considerando que para a maioria dos radionuclídeos de interesse, as energias estão fora desta faixa estando, em geral, entre 100 keV e 3 MeV.

CAPÍTULO 5

DETERMINAÇÃO DE PARÂMETROS ADICIONAIS DO SISTEMA DE MEDIDAS:

EFICIÊNCIA DE DETEÇÃO (ϵ_D); ENERGIA MÉDIATRANSFERIDA ($\Delta\epsilon$) E ERRO INTRÍNSECO (σ_i)

E.1 – Considerações Teóricas

Conforme sugerido anteriormente por Garfinkel⁽⁹⁾ e posteriormente por Taylor⁽¹⁷⁾ e Houtermans⁽²⁷⁾, alguns parâmetros relacionados ao Sistema de medidas de Câmaras de ionização podem ser determinados, a partir do comportamento estatístico das medidas.

As expressões para a obtenção dos parâmetros podem ser deduzidas do seguinte modo:

Considere-se inicialmente o parâmetro Eficiência de Detecção (ϵ_D) definido por:

$$\epsilon_D = \frac{N_d}{N_o} = \text{número de pulsos detetados/número de gamas emitidos} \quad (5.1)$$

segue que:

$$N_d = Q / \bar{q} \quad (5.2)$$

onde:

Q = carga total para atingir a tensão V em t_0 (tempo de integração especificado)

\bar{q} = carga média produzida no volume útil da câmara por gama detetado, dada por:

$$\bar{q} = \frac{\overline{\Delta E}}{\omega} \cdot e \quad (5.3)$$

onde

$\overline{\Delta E}$ = energia média transferida ao gás por gama detetado

ω = energia para formação de um par de íons

e = carga do elétron

A partir da expressão:

$$Q = C.V. \quad (5.4)$$

onde

C = capacitância de integração.

segue que

$$V = \frac{\overline{\Delta E} e}{\omega C} \times Nd \quad (5.5)$$

Considerando que vale a distribuição de Poisson para Nd , escreve-se:

$$\sigma_V = \frac{\partial V}{\partial Nd} \sigma_{Nd} = \frac{\overline{\Delta E} e}{\omega C} Nd^{1/2} \quad (5.6)$$

Combinando as eqs. 5.5 e 5.6, resulta:

$$\frac{\sigma^2 V}{V} = \frac{\overline{\Delta E} e}{\omega C} = \text{constante para um dado nuclídeo}$$

e portanto:

$$\frac{\sigma V}{V} = \left(\frac{\overline{\Delta E} e}{\omega C} \right)^{1/2} \frac{1}{V^{1/2}} \quad (5.7)$$

Dessa expressão (e lembrando que $I = C \frac{V}{t_0}$, I proporcional à atividade), para um tempo de integração prefixo t_0 , V é proporcional à atividade da fonte (A). No limite quando $V \rightarrow \infty$, a flutuação estatística devida à desintegração radioativa tende a zero. Portanto colocando-se em gráfico $\frac{\sigma_V/V}{V}$ (ou $\sigma_V(\%)$) medido, em função de $1/V^{1/2}$, deve-se obter uma reta que extrapolada para a origem ($V \rightarrow \infty$; $V^{-1/2} \rightarrow 0$) dará o valor de $\sigma_1(\%)$. Esse valor é uma estimativa da flutuação atribuída unicamente ao Sistema de Medidas.

O quadrado do coeficiente angular da reta obtida é $\sigma^2_{V/V}$, de onde pode-se deduzir o valor de $\overline{\Delta E}$:

$$\overline{\Delta E} = \frac{\omega C}{e} \cdot \frac{\sigma^2 V}{V} \quad (5.8)$$

Voltando à definição de eficiência eq. 5.1, e considerando:

$$N_0 = I_\gamma A t_0 \quad (5.9)$$

onde

I_γ = número de gamas emitido/desintegração

A = atividade da fonte

t_0 = tempo de integração especificado

Segue que:

$$\epsilon_D = \frac{CV}{e \frac{\Delta E}{\omega} I_\gamma t_0 A} \quad (5.10)$$

Pelas eq. V.8 e V.10, conclui-se que:

$$\epsilon_D = \frac{V/A I_\gamma t_0}{\sigma_{V/V}^2} \quad (5.11)$$

O numerador desta expressão é a eficiência relativa gama (ϵ_γ em Volts/gama emitido), determinada no Cap. 4.

$$\epsilon_D = \frac{\epsilon_\gamma}{\sigma_{V/V}^2} \quad (5.12)$$

A característica essencial desse parâmetro adimensional (ϵ_D) é a sua independência em relação à atividade da fonte e em relação ao tipo de radionuclídeo considerado, sendo apenas função do arranjo experimental utilizado (suporte, detetor).

Essas considerações, apontadas para a variância $\sigma_{V/V}^2$, se aplicam à flutuação estatística da fonte (σ^2) sem a influência da variância da radiação de fundo (σ_B), que deve ser desprezível ou então descontada da variância total medida.

5.2 – Medidas de ϵ_D , $\overline{\Delta E}$ e σ_V para os Radionuclídeos ^{203}Hg e ^{60}Co

Para a determinação das eficiências de detecção (ϵ_D), da energia média transferida (ΔE) e do erro intrínseco (σ^2), foram escolhidos os radionuclídeos ^{203}Hg e ^{60}Co por apresentarem energias gamas bem diversificadas (279 keV, ^{203}Hg e 1,25 MeV, ^{60}Co).

O método utilizado para obter a curva de $\sigma_{V/V}$ versus $1/V^{1/2}$ foi: variar o nível de discriminação superior de $\sim 1,5$ a 5 volts (valor nominal), variando-se deste modo V e portanto $\sigma_{V/V}$.

– ^{203}Hg

Foi utilizada uma ampola de atividade $\sim 57\mu\text{Ci}$. Os valores obtidos para V , $\sigma_{V/V}$ e $\sigma_{V/V}^2$ estão na Tabela V.1, dos quais se obteve a curva da Figura 5.1.

O valor médio do $\sigma_{V/V}^2$ obtido foi:

$$\left\langle \frac{\sigma_{V/V}^2}{V} \right\rangle = (2,67 \pm 0,13) \times 10^{-6} \text{ Volt.}$$

Tabela V.1
Desvio Estatístico em V para o ^{203}Hg

V (Voh)	$1/\sqrt{V}$	$\sigma_V(\%)$	$\sigma^2_{V/V}$ ($\times 10^{-6}$ V)
4,742	0,4592	0,0744	2,62
3,851	0,5095	0,0642	1,59
2,950	0,5822	0,0952	2,68
2,064	0,6960	0,106	2,34
1,182	0,9198	0,163	3,15
0,827	1,099	0,175	2,54

Média de $\sigma^2_{V/V} = (2,67 \pm 0,13) \times 10^{-6}$ Voh

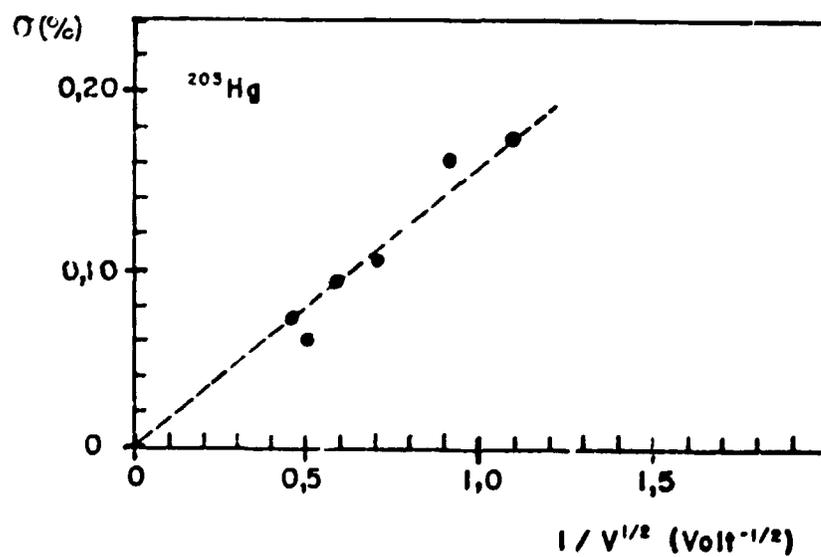


Figura 6.1 - Variação de $\sigma_V(\%)$ em Função de $V^{-1/2}$ para o ^{203}Hg

Considerando para o ^{203}Hg , $\epsilon_\gamma = 2.80 \times 10^{-8} \frac{\text{V}}{\text{quantum}}$ deduz-se que:

$$\epsilon_D = \frac{c}{\langle \sigma^2_{V/V} \rangle} = (1,05 \pm 0,05) \times 10^{-2}$$

Pela eq. 5.8 para $\overline{\Delta E}$ e utilizando os valores de $W = 26,4 \text{ eV}$, $\sigma = 1,60 \times 10^{-19} \text{ Coul}$ e $C = 3,33 \times 10^{-10} \text{ F}$, calcula-se:

$$\overline{\Delta E} = 147 \text{ KeV/gama detectado}$$

– ^{60}Co

A ampola utilizada possui uma atividade $\sim 16 \mu\text{Ci}$. Os valores de V , $\sigma_{V/V}$ e $\sigma^2_{V/V}$ obtidos estão na Tabela V.2. O gráfico está na Figura 5.2.

Para $\langle \sigma^2_{V/V} \rangle$ obtém-se:

$$\left\langle \frac{\sigma^2_V}{V} \right\rangle = (7,7 \pm 1,3) \times 10^{-6} \text{ Volt}$$

Considerando para o ^{60}Co , $\epsilon_\gamma = 8,34 \times 10^{-8} \text{ V/quantum}$ resulta.

$$\epsilon_D = (1,08 \pm 0,18) \times 10^{-2}$$

Para $\overline{\Delta E}$ obtém-se:

$$\overline{\Delta E} = 423 \text{ KeV/gama detectado}$$

– Observações sobre os Resultados

Das curvas 5.1 e 5.2, analisando o valor de σ_V (%) extrapolado para $1/V^{1/2} \rightarrow 0$, verifica-se que o valor de σ_V (%) esperado é $\leq 0,01\%$. A abscissa $1/V^{1/2}$ esta diretamente relacionada com o intervalo de tempo (Δt). Outras medidas (não incluídas nas curvas 5.1 e 5.2) revelaram que, para tempos de integração (Δt) menores que ~ 10 seg, a flutuação $\sigma_{V/V}$ é maior que o valor $0,01\%$ esperado, e cresce quando Δt diminui abaixo de 10 seg. Medidas feitas utilizando núclídeos de meia-vida curta como ^{198}Au e ^{24}Na mostraram que o desvio estatístico para uma medida para tempos de integração da ordem de 1 seg podem atingir $\sim 1\%$. Esta flutuação pode ser atribuída à instabilidades que ocorrem com a interface para tempos de integração muito curtos ou ΔV muito pequenos.

Por outro lado, para tempos de integração maiores que ~ 200 seg, a flutuação estatística aumenta mais rapidamente que o esperado e a curva foge da linearidade, obrigando um número maior de medidas para atingir a precisão que corresponde à região linear.

Tabela V.2
Desvio Estatístico em V para o ^{60}Co

V (Volt)	$1/\sqrt{V}$	$\sigma_V(\%)$	$\sigma^2_{V/V}$ ($\times 10^{-6}$ V)
0,547	1,35	0,438	1,05
0,601	1,29	0,334	0,675
0,682	1,21	0,223	0,340
0,726	1,17	0,347	0,876
0,913	1,05	0,261	0,626
0,996	1,00	0,388	1,50
1,170	0,924	0,161	0,303
1,439	0,834	0,190	0,523
1,527	0,809	0,112	0,191
2,063	0,696	0,288	1,70
2,947	0,582	0,166	0,811
3,833	0,510	0,0772	0,228
4,722	0,460	0,163	1,25

Média de $\sigma^2_{V/V} = (7,7 \pm 1,3) \times 10^{-6}$ V

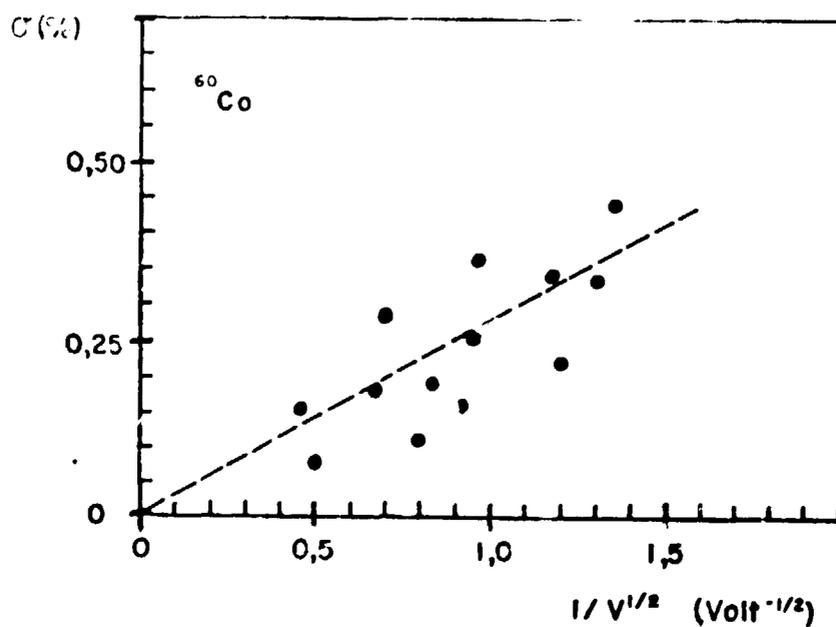


Figura 5.2 - Variação de $\sigma_V(\%)$ em Função de $V^{-1/2}$ para o ^{60}Co

Esta variação é muito menos acentuada que para o caso anterior. Para o ^{24}Na com tempos ~ 900 seg o valor de $\sigma_{V/V}$ é cerca de 0,4%, ou seja, duas vezes o valor esperado (0,2% em 1 medida).

Os valores de ϵ_D para o ^{60}Co e ^{203}Hg coincidiram dentro do desvio estatístico, indicando uma boa consistência dos resultados.

Através do valor médio de ϵ_D entre o ^{60}Co e ^{203}Hg e utilizando a eficiência relativa ϵ_γ obtida no Cap. 4 em função da energia, pode-se estimar a energia média transferida ao gás por gama detectado ($\overline{\Delta E}$) pela relação:

$$\Delta E = \frac{\omega C \epsilon_\gamma}{e \epsilon_D} \quad (5.13)$$

A Tabela V.3 mostra os valores de $\overline{\Delta E}$ para algumas energias gama, utilizando a Tabela IV.2.2.h.

Tabela V.3

Valores de $\overline{\Delta E}$

Energia Gama (keV)	$\overline{\Delta E}$ (keV)	Energia Gama (keV)	$\overline{\Delta E}$ (keV)
59.6	34,8	834,81	302
165.85	91,3	1274,54	412
411.80	166	2754,03	728

Como mostra a equação (5.13), $\overline{\Delta E}$ é diretamente proporcional a ϵ_γ . Desta forma, admitindo que a eficiência de detecção (ϵ_D) deve se manter constante para qualquer energia, conclui-se que o comportamento de $\overline{\Delta E}$ em função da energia gama é o mesmo de ϵ_γ , dado no gráfico 4.2.

Os resultados para ΔE apresentados na Tabela V.3 mostram que a fração da energia emitida, que é transferida ao gás é maior para baixas energias. Isso também foi observado por Houtermans⁽²⁷⁾, utilizando uma Câmara de Ionização similar (IG 13/A20). Este comportamento pode ser atribuído ao valor do coeficiente de absorção para o Argônio (gás constituinte da Câmara de Ionização), que é maior em baixas energias.

CAPÍTULO 6

CONCLUSÕES

O propósito deste trabalho foi o de instalar e calibrar um Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\gamma$ para o Laboratório de Metrologia Nuclear (L.M.N.) do I.E.A.

Conforme já foi ressaltado, as vantagens principais deste sistema são: simplicidade na preparação da amostra e rapidez na medida de Atividade. Estes fatores, aliados à possibilidade de padronizar soluções em um intervalo grande de Atividades, demonstram a importância do sistema, principalmente nas medidas de rotina, comumente solicitadas ao Laboratório. Isso é conseguido com um prejuízo pequeno na exatidão, a qual em diversos casos é limitada essencialmente pela exatidão obtida na padronização inicial, feita no Sistema Absoluto. Essa padronização foi feita, para os diversos radionuclídeos apresentados no Cap. 3, por meio do Sistema de Medidas Absolutas de Atividade pelo Método de Coincidências $4\pi\beta\gamma$, instalado no L.M.N. A confiabilidade desse Sistema é verificada periodicamente em intercomparações feitas pelo L.M.N. com outros laboratórios do gênero, as quais foram iniciadas em 1967, época em que foi feita a Comparação Internacional do Radionuclídeo ^{60}Co .

Nesta dissertação foram desenvolvidos dois métodos diferentes para a determinação de Atividade de soluções pelo Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\gamma$:

1) Método Direto e 2) Método Indireto.

1) O método Direto é o mais simples e se aplica aos radionuclídeos apresentados no Cap. 3. Nesse método, é feita uma comparação das respostas obtidas no Sistema de Câmara de Ionização entre a solução radioativa de atividade desconhecida e a solução de atividade conhecida. Essa comparação é feita por meio do Fator de Calibração (F) e pode fornecer uma incerteza na determinação da Atividade entre 0,2 a 0,4%, dependendo do radionuclídeo considerado.

É importante acrescentar que essa exatidão é obtida desde que certos cuidados sejam tomados, particularmente com relação à monitoração e à presença de impurezas radioativas.

2) O método Indireto se aplica a outros radionuclídeos (que sejam emissores gama), não relacionados no Cap. 3. Nesse caso, a Atividade da solução é determinada pela utilização das Curvas de Eficiência Relativa Gama e Beta apresentadas no Capítulo 4.

As eficiências para cada ramo gama e beta são determinadas pelas curvas de eficiência (Cap. 4) e a Atividade é calculada pela Equação 4.1. Por esse método, é possível a medida de certos radionuclídeos cuja padronização pelo método absoluto é difícil ou requer técnicas especiais (ex. ^7Be , ^{137}Cs). A incerteza obtida é, em geral, maior que pelo método Direto, mas pode chegar próximo a 0,2% em casos favoráveis, tais como o caso de radionuclídeos com esquema de decaimento bem conhecido e com energias gama na faixa entre 400 a 1300 keV. Nos testes de consistência das curvas de Eficiência Relativa, discutidos no Cap. 4, a exatidão ficou limitada essencialmente pela incerteza nas intensidades absolutas dos gamas dos radionuclídeos envolvidos, as quais são obtidas da literatura.

A faixa de atividades mensuráveis pelo Sistema de Câmara de Ionização é função do tipo de radionuclídeo considerado. O limite inferior de medidas é da ordem de alguns micro-curies e o limite superior pode atingir várias dezenas de mili-curies, para certos radionuclídeos (vide Tabela IV.11). Estes limites são aceitáveis na maioria dos casos, considerando as soluções radioativas comumente requisitadas ao L.M.N. para serem padronizadas.

O tempo empregado na medida da solução da ampola pelo Sistema de Câmara de Ionização é, em geral, da ordem de apenas alguns minutos. Isso denota a rapidez do método, quando comparado com outros sistemas como, por exemplo, o Sistema Absoluto por Coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$, onde a padronização pode demorar vários dias para se conseguir a exatidão de alguns décimos de por cento, na Atividade específica da solução.

Além desses aspectos, verificou-se que parâmetros importantes do Sistema de Câmara de Ionização tais como: Eficiência de Detecção, Erro Intrínseco do Sistema, Energia Média Transferida ao Gás do Detetor, puderam ser determinados por meio da análise das flutuações nas medidas de corrente integrada para alguns radionuclídeos (vide Cap. 5).

Embora, pelas considerações acima apontadas, o Sistema de Câmara de Ionização esteja calibrado e em condições de padronizar novas soluções radioativas para o L.M.N., certos aspectos do sistema podem ainda ser melhoradas: 1) No momento a reciclagem do Sistema para medidas consecutivas é feita manualmente. Entretanto, aguarda-se a obtenção de um rele de alta isolação para ser instalado no circuito de entrada do eletrômetro, o que irá possibilitar a reciclagem automática das medidas, permitindo ao operador maior comodidade para efetuar a medida. 2) A substituição do eletrômetro (610c) por um eletrômetro do tipo de Capacitor Vibrante pode aumentar a estabilidade do Sistema no tempo. O aumento de estabilidade permite um rigor menor na monitoração, facilitando a medida. 3) As curvas de Eficiência Relativa determinadas no Cap. 4, incluíram 11 pontos, correspondentes aos radionuclídeos com esquemas de decaimento bem conhecidos. Esses pontos foram suficientes para a realização do presente trabalho com uma exatidão satisfatória. Entretanto, mais pontos sempre podem ser acrescentados, o que proporciona um aumento da exatidão nas interpolações e extrapolações.

Para isso pode-se sugerir a medida absoluta de outros radionuclídeos tais como: na região entre o ^{241}Am (59,6 keV) e o ^{139}Ce (165,85 keV) podem ser inseridos os pontos do ^{109}Cd (88,0 keV), do ^{57}Co (122,1 e 136,4 keV) e do ^{141}Ce (145,4 keV). Entre o ^{139}Ce e o ^{198}Au (411,8 keV) podem ser inseridos o ^{203}Hg (279,2 keV) e o ^{51}Cr (320,0 keV). Na faixa entre o ^{54}Mn (834,8 keV) e o ^{60}Co (1173,2 keV) pode-se introduzir o ^{65}Zn (1115,4 keV). Além desses, pode-se incluir o ^{88}Y (1836,1 keV), que é um ponto importante na faixa entre o ^{24}Na (1368,5 keV) e o ^{24}Na (2754,0 keV). Todos esses radionuclídeos citados, possuem intensidades gama absolutas bem determinadas o que contribui para uma boa exatidão na determinação das Eficiências Relativas. Além disso, com a inclusão desses novos radionuclídeos será aumentado o número de radionuclídeos possíveis de serem padronizados pelo método Direto, enriquecendo as possibilidades de utilização do Sistema de Câmara de Ionização para medidas de grande exatidão.

Finalmente pode-se acrescentar que o Sistema de Câmara de Ionização $4\pi\text{-}\gamma$ está apto a efetuar outros testes de consistência, não incluídos neste trabalho, tais como: 1) Confirmação das massas determinadas inicialmente na micro-balança Metler M5-SA, em diferentes ampolas para a mesma solução. 2) Confirmação de Fatores de Diluição entre a solução original e as soluções diluídas, que sejam eventualmente necessárias para padronizações no Sistema Absoluto $4\pi\beta\text{-}\gamma$. A incerteza que pode ser obtida nestes testes de consistência é da ordem de 0,1%. Em casos favoráveis, valores abaixo de 0,05% podem ser alcançados.

APÊNDICE

MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE ESPECÍFICA DAS SOLUÇÕES RADIOATIVAS EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta\gamma$

(a) Introdução

O método de coincidência, utilizado inicialmente por H. Geiger e A. Werner em 1924 para a determinação absoluta de atividade, teve suas perspectivas ampliadas em 1929, pela utilização da técnica de pulsos eletrônicos por W. Bothe. As primeiras tentativas de sistematização do método se devem a J. L. Putman⁽²¹⁾, que também introduziu algumas correções a serem aplicadas ao método.

Atualmente, a técnica de coincidências é reconhecidamente uma das mais precisas para a determinação absoluta da Atividade de radionuclídeos. Discussões pormenorizadas são apresentadas por diversos autores^(5,8,29,30), dando ênfase especial a Sistemas de Coincidência $4\pi\beta\gamma$. A conveniência da utilização de um detector de geometria 4π , operando na região proporcional é apontada por P. J. Campion⁽⁵⁾, demonstrando que, para esse caso, a maioria das correções são pequenas.

Uma revisão geral do método é apresentada por A. P. Baerg^(1,2), que introduz expressões para a determinação da correção devida ao esquema de desintegração, obtida apenas a partir de grandezas observáveis pelo Sistema de Coincidências.

(b) Sistema de Coincidências $4\pi\beta\gamma$ do Laboratório de Metrologia Nuclear do I.E.A.

O sistema de coincidências $4\pi\beta\gamma$, instalado no Laboratório de Metrologia Nuclear do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, é discutido pormenorizadamente por L. P. Moura na referência⁽²⁰⁾.

Esse sistema é constituído por um detector 4π — proporcional a gás-fluente, do tipo "pill-box", projetado para a detecção de radiação beta, alfa, raio x e elétrons Auger. Acoplados a este detector estão instalados dois cintiladores de cristal de NaI(Tl) de 3" x 3" para detecção da radiação gama. A Figura A.1 mostra um diagrama simplificado dos componentes sistema.

O bom desempenho do Sistema já foi comprovado em diversas Comparações Internacionais para padronização de radionuclídeos em que o LMN participou.

(c) Método de Preparação de Fontes

As fontes são preparadas em sala especial para pesagens, seguindo as normas prescritas pelo BIPM⁽⁴⁾. A solução micropesada é colocada sobre suporte especial constituído por uma arandela de aço, sobre a qual é colocada uma película de VYNS (acetato de cloreto de polivinila). Para cobrir esta película com uma superfície condutora, os suportes sofrem um processo de metalização à vácuo, com deposição de ouro, antes da preparação das fontes.

(d) Medida da Atividade Absoluta

As fontes assim preparadas são medidas no Sistema de Coincidências $4\pi\beta\gamma$. Em geral, para se alcançar um erro estatístico menor que 0,1%, é necessário um tempo de medida de aproximadamente 2 horas.

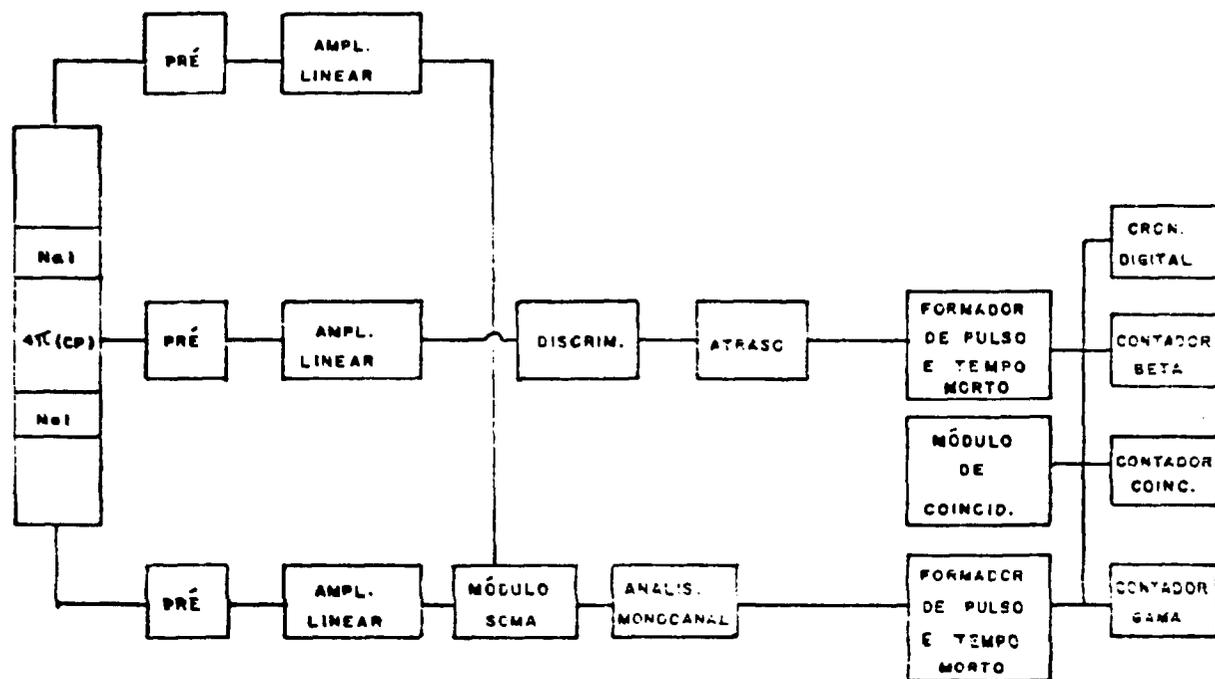


Figura A.1 - Sistemas de Coincidências $4\pi\beta\gamma$ do LMN

(e) Equações para a Determinação da Atividade Absoluta pelo Método da Coincidência $4\pi\beta\gamma$

Para o cálculo de atividade específica de cada fonte, foi aplicada a seguinte relação⁽³⁾:

$$N_0 = \frac{N_\beta N_\gamma [1 - \tau_r (N'_\beta + N'_\gamma)] e^{-\lambda t_e}}{(N_c - 2\tau_r N'_\beta N'_\gamma) (1 - \tau N'_c) (1 + K_e) t m}$$

onde:

N_0 = atividade da fonte em Bq/g (dps/g)

$N'_\beta, N'_\gamma, N'_c$ = taxas de contagem observadas nos canais β , γ e coincidência, respectivamente, sem nenhuma correção.

N_β, N_γ, N_c = taxas de contagem, corrigidas para a contagem de fundo.

τ = tempo morto, fixado eletronicamente, para as vias β e γ

τ_r = tempo de resolução para a coincidência.

t = tempo de medida (seg)

m = massa da fonte (g)

t_e = tempo de espera

λ = cte de decaimento do radionuclídeo considerado

K_e = correção para esquema de decaimento:

$$K_e = \frac{(1 - \epsilon_\beta)}{\epsilon_\beta} C[(\epsilon_\beta)_\gamma, \epsilon_\gamma]$$

$$\epsilon_\beta = \left[\frac{N_\beta}{(1 - \tau N'_\beta) N_0} - (\epsilon_\beta) \right] \frac{1}{1 - (\epsilon_\beta)_\gamma} =$$

= eficiência do detetor 4π proporcional

$$\epsilon_\gamma = \frac{N_\gamma}{(1 - \tau N'_\gamma) N_0} = \text{eficiência dos cristaldores de NaI (Tl)}$$

$(\epsilon_\beta)_\gamma$ = eficiência de detecção γ para o detetor 4π proporcional

C = uma constante que depende do esquema de decaimento e do arranjo experimental

Esta constante é obtida experimentalmente, efetuando-se medidas consecutivas com uma determinada fonte (em geral é escolhida aquela que resulte maior eficiência β), variando-se o parâmetro de ineficiência $(1 - \epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$ por meio da absorção de betas de baixa energia, obtida pela colocação de absorvedores de VYNS metalizados ou de finas folhas de alumínio. A constante C é dada pelo coeficiente angular da reta obtida, colocando-se $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c N_0}$ em função da $(1 - \epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$.

As constantes $C[(\epsilon_\beta)\gamma, \epsilon_\gamma]$ foram determinadas previamente pelo LMN com exceção do ^{134}Cs para o qual esta constante foi determinada no presente trabalho em duas faixas de energias gama diferentes.

Estas equações são válidas para a medida por coincidência (α, x , elétrons Anger) $-\gamma$, trocando-se o índice β por α , x e A respectivamente.

Excepcionalmente, para o radionuclídeo ^{22}Na , utilizando-se o método do pico-gama nuclear, o parâmetro K é modificado, sendo dado por⁽²⁸⁾:

$$K_\epsilon = -\frac{(1 - \epsilon_\beta)}{\epsilon_\beta} (\epsilon_\beta)\gamma_n + \frac{1 - p}{p} \frac{(\epsilon_\beta)\gamma_n}{\epsilon_\beta}$$

onde:

$(\epsilon_\beta)\gamma_n$ = eficiência do detector 4π -proporcional para a detecção do gama nuclear (1274,5 keV).

p = probabilidade de desintegração por emissão de pósitrons, obtida do esquema de decaimento.

Para a medida de radionuclídeos de meia-vida curta (ex.: ^{42}K , ^{24}Na), foi feita a correção para decaimento, durante as várias medidas consecutivas necessárias para atingir o desvio estatístico requerido ($\leq 0,1\%$).

(f) Determinação de Erros

Nos resultados experimentais (cap. 3) são apresentados dois tipos de erros:

– Erro Estatístico, definido por:

$$\sigma_M = \left[\frac{\sum_{i=1}^n (N_{0i} - \bar{N}_0)^2}{n(n-1)} \right]^{1/2}$$

que corresponde ao desvio padrão da média entre n medidas.

– Erro Sistemático de uma medida, definido por:

$$\sigma_e = \left[(2\epsilon_\beta \epsilon_\gamma - \epsilon_\beta - \epsilon_\gamma + 1) / (N_c \text{ total}) \right]^{1/2}$$

que corresponde ao erro padrão esperado para a medida, dado pela consistência dos parâmetros do método de coincidência $4\pi\beta\gamma$.

Além desses dois tipos de erros, pode-se considerar os erros introduzidos pela incerteza na determinação de alguns parâmetros da fórmula de atividade:

- incerteza na massa: para fontes da ordem de 30 mg, o erro estimado é $\leq 0,03\%$.
- no tempo morto: $\sim 0,01\%$
- no tempo de resolução: $\sim 0,01\%$
- em K_ϵ : em geral é o erro sistemático que predomina sobre os outros; varia de nuclídeo para nuclídeo. Para os nuclídeos onde o erro em K_ϵ acarreta uma incerteza na atividade maior que o desvio estatístico, foi adotada esta incerteza sistemática para o valor da atividade.
- em $e^{\lambda t}$: este erro já está englobado na incerteza sistemática de $\Delta V/\Delta t$ (Cap. 2.3.1.d).

(g) Medida Absoluta de Atividade para Emissores β – Puros

Para obter a atividade absoluta de emissores β -puros com alta precisão, em geral é utilizado o método do traçador⁽²⁾. Para o presente trabalho, os emissores β -puros foram calibrados a fim de se estimar a contribuição do efeito de "Bremstrahlung" dos betas de emissores β - γ . Para esse propósito, foi suficiente medir-se a atividade absoluta das soluções pelo método $4\pi\beta$, uma vez que a contribuição dos betas para a corrente da Câmara de Ionização foi em geral menor que 0,5%.

As fontes, preparadas do mesmo modo já citado, no método de coincidências $4\pi\beta$ - γ foram medidas com um erro estatístico $\leq 0,1\%$.

Nesse caso a relação para o cálculo da atividade específica pode ser dada por:

$$\bar{N}_0 = \left[\frac{1}{n} \sum \frac{N_{\beta i}}{(1 - N'_{\beta} \tau)_i} \right] \frac{\sigma \lambda t}{t m}$$

N'_{β} = contagem beta sem nenhuma correção.

onde N_{β} = contagem beta, corrigida para a radiação de fundo.

Os outros parâmetros já foram definidos anteriormente.

A determinação do erro estatístico é a mesma utilizada para os emissores β - γ .

Por esse método é de se esperar uma flutuação maior na atividade de diferentes fontes, ocasionada pela auto absorção de betas de baixa energia nos materiais do suporte ou na própria fonte.

Para o radionuclídeo ^{241}Am , não foi possível utilizar o método de coincidências $4\pi\alpha$ - γ , devido à grande atenuação do gama de baixa energia (59 keV). A atividade foi determinada pelo método $4\pi\alpha$.

Para determinar a atividade da solução como média entre as atividades obtidas para cada fonte, considerou-se duas possibilidades:

- Média Aritmética.
- Média Ponderada, utilizando como peso o valor de $1/\sigma^2$ onde σ é o desvio estatístico de cada atividade.

Para a maioria dos radionuclídeos padronizados, os valores obtidos em ambos os casos coincidiram dentro de seus desvios, sendo portanto equivalente o uso de qualquer um dos dois valores.

Para alguns casos, tais como para emissores beta puros, onde as flutuações entre as atividades de fontes diferentes foram maiores que o erro estatístico para cada uma delas, adotou-se a Média Aritmética. Nesse caso, as flutuações podem ser atribuídas a variações sistemáticas do método.

ABSTRACT

This work describes the calibration of a 4π well-type Ionization Chamber System installed at the Laboratório de Metrologia Nuclear, of the Instituto de Energia Atômica of São Paulo used for of the activity determination of radioactive solutions.

The determination can be performed by two methods: 1) Direct Method, comparing the Ionization Chamber response for solutions of unknown activity against that obtained with a solution which was standardized by the Absolute $4\pi\beta\gamma$ Coincidence Method. By this method the following radionuclides were standardized: ^{241}Am , ^{139}Ce , ^{198}Au , ^{22}Na , ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{42}K and ^{24}Na . In this case, the accuracy achieved was about 0,2 to 0,4%. 2) Indirect Method, by means of curves of relative beta or gamma efficiency, which were determined in this work. This method can be applied for those radionuclides not included in the direct method. In this case, the accuracy depends on the gamma energy range of the curves and on the accuracy of the absolute gamma intensities, taken from the literature. In general the uncertainty is greater than the direct method, but values of 0,2% can be achieved in favourable cases.

The upper and lower limits of Activity that can be measured depend on the radionuclide. These limits are from a few micro-curies to many mili-curies, which are satisfactory for most purposes.

The sample preparation is simple and the time spent in the measurement is, in general, restricted to a few minutes. These are some of the advantages of this Ionization Chamber System in comparison with other systems.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. BAERG, A. P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, 3(4):105-8, 1967.
2. BAERG, A. P. Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, 2(1):23-31, 1966.
3. BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES. *Formules utilisées pour le calcul de l'activité absolue*, Sèvres, (Circular letter: 03/09/1971).
4. BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES. *Procedures for accurately diluting dispensing solutions*. Sèvres, 1975. (Monographie BIPM-1).
5. CAMPION, P. J. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *Int. J. appl. Radiat. Isotopes*, 4:232-48, 1959.
6. DALE, J. W. G.; PERRY, W. E.; PULFER, R. F. A beta-gamma ionization chamber for substandards of radioactivity. I. *Int. J. appl. Radiat. Isotopes*, 10:65-71, 1961.
7. ENDT, P. M. & VANDER LEUN, C. Energy levels of A=21-44 nuclei (V). *Nucl. Phys.*, A214:1-625, 1973.
8. GANDY, A. *Preparation et étalonnage des sources radioactives de références*. Agence Internationale de l'Energie Atomique, 1961 (Monograph n° 14).
9. GARFINKEL, S. B. Semiautomatic Townsend Balance System. *Rev. scient. Instrum.*, 30:439-42, 1959.
10. GHIHO, J. P.; OSTROWSKY, A.; SIMOEN, J. P.; HILLION, P. *Mesure des courants faibles au Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants*. C.E.A., Saclay, Décembre 1974. (CEA-R-4637).
11. GOODIER, J. W.; HUGHES, F. H.; WOODS, M. J. The calibration of the 1363A ionisation chamber for $^{87\text{m}}\text{Sr}$. *Int. J. appl. Radiat. Isotopes*, 19:795-7, 1968.

12. HARMATZ, B. Nuclear data sheets for A=198. *Nucl. Data Sh.*, 21:377-436, 1977.
13. HIRSHFELD, A. T. Germanium detector efficiency calibration with NBS standards. In: ENERGY RESEARCH AND DEVELOPMENT ADMINISTRATION, Washington, D.C. *Proceeding, ERDA x-and gamma-ray symp. Ann Arbor, Mi. May 19-21, 1976.* Washington, D.C. 1976. (CONF. 760539). p.90-3.
14. KAWADE, K.; YAMAMOTO, H.; YOSHIKAWA, K.; IIZAWA, K.; KITAMURA, I.; AMENIAS, S.; KATOH, T.; YOSHIZAWA, Y. Gamma-ray spectroscopy of ^{42}K . *J. phys. Soc. Japan*, 29(1):43-6, July 1970.
15. LEGRAND, J. et alii. *Table des radionucléides.* Saclay, Fr., C.E.A., Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants, 1974.
16. MARTIN, M. J. & BLICHERT-TOFT, P. H. Radioactive atoms. *Nucl. Data Tabl.*, A8:1-198, 1970.
17. MERRIT, J. S. *Gravimetric Sampling in the standardization of radionuclides.* Chalk River Ont. Atomic Energy Canada Limited, 1967. (AECL-2679).
18. MERRIT, J. S. & TAYLOR, J. G. V. Decay of cesium-137 determined by absolute counting methods. *Analyt. Chem.*, 37(3):351-4, 1965.
19. MOREL, J. *Étude des différents problèmes posés par l'étalonnage précis d'un spectromètre γ .* Saclay, Fr., Commissariat à l'Energie Atomique, Mars 1975. (CEA-R-4656).
20. MOURA, L. P. *Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionucléidos – Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ^{223}Tl .* São Paulo, 1969. (Tese de doutoramento).
21. PUTMAN, J. L. Absolute measurements of the activity of beta emitters, London, *Brit. j. Radiol.*, 23:46-63, 1950.
22. RAPAPORT, J. Nuclear data sheets for A=52. *Nucl. Data Sh.*, B3-5, 6-85, 1970.
23. RYTZ, A. *International reference system for measuring activity of gamma-ray emitting nuclides.* Sèvres, Bureau International des Poids et Mesures, Dec. 1976. (Circular letter).
24. RYTZ, A. *Report on the international comparison of activity measurements of a solution of ^{139}Ce (march 1976).* Sèvres Bureau International des Poids et Mesures, 1977.
25. STORM, E. & ISRAEL, H. I. Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for elements Z=1 to Z=100. *Nucl. Data Tabl.*, A7:565-681, 1970.
26. WATT, D. E. & RAMSDEN, D. *High sensitivity counting techniques.* New York. The MacMillan Company, 1964. p.18-20.
27. WEISS, H. M. $4\pi\gamma$ – ionisation chamber measurements. *Nucl. Instrum. Meth.*, 112:291-7, 1973.
28. WILLIAMS, A. Measure of the ratio of electron capture to positron emission in the decay of Na-22. *Nucl. Phys.*, 52:324-32, 1964.
29. WILLIAMS, A. & CAMPION, P. J. Measurement of the γ – sensitivity of a $4\pi\beta$ – counter. *Int. J. appl. Radiat. Isotopes*, 14:533-40, 1963.
30. WILLIAMS, A.; HUGHES, F. H.; CAMPION, P. J. Systematic errors in $4\pi\beta\gamma$ coincidence measurements. *Metrologia*, 4(4):178-80, 1968.

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal, 11049 - Pinheiros
CEP 05508
01000 - São Paulo - SP

Telefone: 211-6011
Endereço Telegráfico - IEATOMICA
Telex - 011-23592 IENA BR