



SISTEMA DE CALIBRAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS ENGLOBALDO OS  
MÉTODOS DE COINCIDÊNCIA, ANTI-COINCIDÊNCIA E CIEMAT – NIST

Jamir dos Santos Loureiro

Tese de Doutorado apresentada ao programa de Pós-Graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes  
José Ubiratan Delgado

Rio de Janeiro  
Novembro de 2013

SISTEMA DE CALIBRAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS ENGLOBANDO OS  
MÉTODOS DE COINCIDÊNCIA, ANTI-COINCIDÊNCIA E CIEMAT – NIST

Jamir dos Santos Loureiro

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ  
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA  
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS  
REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM  
CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:



---

Prof. Ricardo Tadeu Lopes, D.Sc.



---

Prof. Edgar Francisco Oliveira de Jesus, D.Sc.



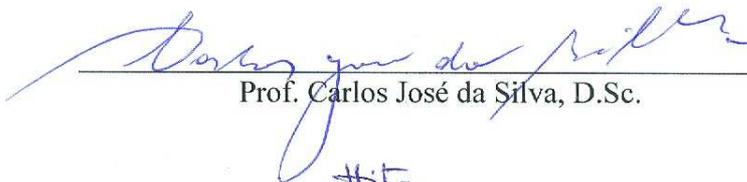
---

Profa. Inayá Correa Barbosa Lima, D.Sc.



---

Prof. José Ubiratan Delgado, D.Sc.



---

Prof. Carlos José da Silva, D.Sc.



---

Prof. Luiz Tauhata, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

NOVEMBRO DE 2013

Loureiro, Jamir dos Santos

Padronização de fontes radioativas usando métodos comparáveis e amostras de preparação simples/ Jamir dos Santos Loureiro. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2013.

XIII, 138 p.: il.; 29,7 cm.

Orientador: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2013.

Referências Bibliográficas: p. 114-119.

1. Padronização Direta. 2. Anti-Coincidência com MTR2. 3. Coincidência  $x\text{-}\gamma$  e  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ . 4. Método CIEMAT–NIST I. Ricardo Tadeu, et al.. II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

Aos meus pais (in memoriam) Jayme S. Loureiro e Albina Nicolau Loureiro,  
aos meus irmãos Neide, Jairo e Juçara, aos meus filhos Gabriel e Mariana e à  
minha esposa Maria Elizabeth.

## **AGRADECIMENTOS**

Ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria pelo apoio institucional e infra-estruturas técnica e laboratorial.

À UFRJ e COPPE pelo apoio institucional e infra-estrutura acadêmica.

À minha família pela paciência, apoio e inspiração.

À Secretaria e toda equipe de profissionais do PEN – Programa de Engenharia Nuclear da COPPE/UFRJ pela atenção e cordialidade.

Aos orientadores Dr. Ricardo Tadeu Lopes (PEN/COPPE/UFRJ) e Dr José Ubiratan Delgado (IRD/CNEN) pelo apoio, atenção, disponibilidade e amizade.

Ao Dr. Ademir Xavier da Silva (professor do PEN/COPPE/UFRJ) pela atenção e gentileza.

Aos colegas e amigos da turma de alunos do doutorado do PEN/COPPE/UFRJ pela convivência harmoniosa e enriquecedora troca de experiências.

À equipe da oficina mecânica do IRD pela atenção e disponibilidade, em especial ao Adilson pela dedicação na construção e montagem da Célula Especial para Detecção com Cintiladores em meio Líquido.

À toda equipe de colegas e amigos da metrologia de radionuclídeos do IRD pelo apoio e suporte em todos os momentos, em especial à Estela, amiga de turma e estudos em grupo, ao Roberto Poledna pelo apoio relacionado à escolha dos radionuclídeos e funcionamento da instrumentação, ao Ronaldo pela ajuda na restauração de módulos eletrônicos defeituosos, ao Régio pela confecção de fontes, ao Carlos José pelo apoio nas medições

com o método de anti-coincidência MTR2, ao Akira Iwahara pelo apoio nas medições com o método de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  e ao Paulo Alberto pela troca de informações sobre o método CIEMAT–NIST.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.).

## SISTEMA DE CALIBRAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS ENGLOBALANDO OS MÉTODOS DE COINCIDÊNCIA, ANTI-COINCIDÊNCIA E CIEMAT – NIST

Jamir dos Santos Loureiro

Novembro/2013

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Departamento: Engenharia Nuclear

Foi desenvolvido no Instituto de Radioproteção e Dosimetria, no Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes, um sistema de medições múltiplas que permite a operação simultânea de até três diferentes métodos de padronização, incorporando na rotina de trabalho um sistema de coincidência  $\gamma$ -X com sensibilidade para energias abaixo de 100 keV e também um sistema de detecção com cintiladores líquidos, usando duas fotomultiplicadoras móveis. Foram escolhidos radionuclídeos úteis em medicina nuclear, radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos e radionuclídeos com alta probabilidade para emitir raios X após capturar elétrons. Os sistemas foram validados por meio de padronizações com os seguintes métodos: de anti-coincidência, usando amostras de  $^{243}\text{Am}$  e  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ; de Coincidência, usando amostras de  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{65}\text{Zn}$ ; e CIEMAT-NIST, usando amostras de  $^{60}\text{Co}$ . Para os objetivos da metrologia de radionuclídeos foram alcançados bons resultados com todas as amostras, apresentando diferenças inferiores a 1% quando comparados com seus respectivos valores de referência. As diferenças encontradas nas comparações de resultados foram de 0,40 % com o  $^{243}\text{Am}$ , 0,09 % com o  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ , 0,48 % com o  $^{133}\text{Ba}$ , 0,72% com o  $^{65}\text{Zn}$  e 0,32 % com o  $^{60}\text{Co}$ .

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D. SC.).

RADIONUCLIDES CALIBRATION SYSTEM INVOLVING THE METHODS OF  
COINCIDENCE, ANTI-COINCIDENCE AND CIEMAT – NIST

Jamir dos Santos Loureiro

Novembro/2013

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Department: Nuclear Engineering

Was developed at the Institute of Radiation Protection and Dosimetry, in the National Metrology Laboratory of Ionizing Radiation, a multiple measurements system that allows simultaneous operation up to three different methods of standardization, incorporating in the working routine a  $\gamma$ -X coincidence system with sensitivity for energies below 100 keV and also a detection system by liquid scintillation using two mobile photomultipliers. Were chosen radionuclides useful in nuclear medicine, radionuclides with complex decay schemes and electron capture radionuclides with high probability to X rays emission. The systems were validated by means of standardizations with the following methods: anti-coincidence, using  $^{243}\text{Am}$  and  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  samples; coincidence, using  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{65}\text{Zn}$  samples and CIEMAT-NIST, using  $^{60}\text{Co}$  samples. For the radionuclide metrology goals were achieved good results with all samples, showing differences below 1% when compared to their respective reference values. The differences found in the results comparisons were 0.40% with the  $^{243}\text{Am}$ , 0.09% with the  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ , 0.48% with the  $^{133}\text{Ba}$ , 0.72% with the  $^{65}\text{Zn}$  and 0.32% with the  $^{60}\text{Co}$ .

## ÍNDICE

Capítulo 1. INTRODUÇÃO	1
1.1 preâmbulo	1
1.2 Importância do trabalho	2
1.3 Objetivo do trabalho	4
1.4 Organização do trabalho	5
Capítulo 2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	7
2.1 Metrologia de Radionuclídeos	7
2.2 O Decaimento Radioativo	8
2.3 O Decaimento $\alpha$	10
2.4 O Decaimento $\beta$	12
2.4.1 Histórico	12
2.4.2 A teoria de Fermi	16
2.4.3 O fator nuclear de correção Coulombiana	18
2.4.4 O fator de forma	20
2.4.5 O efeito de blindagem pelos elétrons atômicos	24
2.5 O Decaimento por Captura Eletrônica	24
2.5.1 Reordenação atômica com emissão de um raio $X_K$ após uma captura K	25
2.5.2 Reordenação atômica com emissão de elétrons Auger após uma captura K	27
2.5.3 Reordenação atômica após uma captura L	28
2.5.4 Rendimentos médios, de fluorescência $\overline{\omega}_L$ e Auger $\overline{a}_L$ , numa captura L	29
2.5.5 Probabilidade de captura em transições permitidas ( $\Delta j = 0,1$ )	30
2.5.6 Probabilidade de captura em transições com proibição única ( $\Delta j = 2,3$ )	32
2.6 O decaimento $\gamma$	33
2.6.1 Histórico	33
2.6.2 O decaimento radioativo por meio da emissão de fótons $\gamma$	34
2.6.3 O decaimento radioativo por meio da Conversão Interna	38
2.7 Cintilação em Meio Líquido	41
2.7.1 O processo de conversão de energia em luz	41

2.7.3	A migração de energia no solvente	44
2.7.4	A migração de energia do solvente para o soluto	45
2.7.5	A transferência de energia do solvente para o soluto primário	46
2.7.6	A transferência de energia do solvente para o soluto secundário	47
2.8	O Método de Coincidência	49
2.9	Deteção com Cintiladores Líquidos	57
2.9.1	O processo quantitativo de deteção com Cintiladores Líquidos	57
2.9.2	Modelo do Parâmetro livre baseado no Corte Energético	59
2.9.3	Modelo Estatístico para o Parâmetro Livre	60
2.9.4	Eficiência de deteção usando radionuclídeos que decaem por Captura Eletrônica Pura	63
2.10	O Método CIEMAT–NIST	66
 Capítulo 3. METODOLOGIA E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS		71
3.1	Estratégia de implementação	71
3.2	Escolha do ambiente para a realização das medições	72
3.3	Projeto e montagem da Câmara para deteção com Cintiladores Líquidos	73
3.4	Projeto e montagem do suporte de fontes para medições simultâneas com diferentes métodos de padronização	75
3.5	Determinação das condições operacionais	78
3.6	Testes de validação dos sistemas de deteção	80
3.6.1	Teste de validação do sistema usando o detector de Iodeto de Sódio e a <i>CDCL</i>	81
3.6.2	Teste de validação do sistema usando a <i>CDCL</i> com o Método CIEMAT–NIST	87
3.6.3	Teste de validação do sistema usando os detectores de Germânio e Iodeto de Sódio	92
 Capítulo 4. RESULTADOS		102
4.1	Comparação usando o método de anti-coincidência com afastamento das FMTs e com discriminação eletrônica	102

4.2	Comparação usando o método CIEMAT–NIST com a <i>CDCL</i> e com o espectrômetro $\alpha/\beta$ da LKB-WALLAC	106
4.3	Comparação usando os métodos de Coincidência $\gamma$ -X e $4\pi\beta$ - $\gamma$	110
Capítulo 5. CONCLUSÕES		114
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS		117
ANEXO A – Multipolos Elétricos		123
ANEXO B – Harmônicos Esféricos		129
ANEXO C –Artigo “Standardization of $^{166m}\text{Ho}$ and $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$ by live-timed anti-coincidence counting with extending dead time” publicado na revista Applied Radiation and Isotopes		134

## LISTA DE SÍMBOLOS E ABREVIATURAS

- BIPM – Bureau International des Poids et Mèures, França;
- Bq – Becquerel, unidade de atividade usada para quantificar a taxa de decaimento de um radionuclídeo e vale  $s^{-1}$ ;
- CDCL – Câmara para Detecção com Cintiladores Líquidos;
- CGPM – Conferência Geral de Pesos e Medidas;
- CIEMAT – Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas, Espanha;
- CIEMAT–NIST, método para padronização de soluções radioativas por cintilação em meio líquido, desenvolvido em parceria pelo CIEMAT/Espanha e NIST/EUA;
- CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear, autarquia federal responsável pelo fomento e controle das atividades com a energia nuclear no Brasil;
- dps – desintegração por segundo;
- Dewar – Recipiente para armazenar nitrogênio líquido, acoplado com detectores de Germânio;
- FMT – Fotomultiplicadora;
- FMTs – Fotomultiplicadoras;
- HISAFE III – Solução química comercial usada como cintilador;
- HPGe – Detector semi-condutor de Germânio intrínseco com alta pureza;
- ICRM – International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications;
- INMETRO – Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial;
- IRD – Instituto de Radioproteção e Dosimetria, instituto de pesquisas ligado à CNEN;
- LKB-WALLAC – Fabricante do Winspectral  $\alpha/\beta$  Liquid Scintillation Counter model 1414;
- LNMRI – Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes, pertencente ao IRD/CNEN e designado pelo INMETRO em 1989 como responsável pela metrologia das radiações ionizantes no Brasil;
- MCA – Multi channel Analyser (Analisador Multicanal);
- NaI(Tl) – Detector de Iodeto de Sódio ativado com Tálcio;
- NCRP – National Council on Radiation Protection;
- NIST – National Institute of Standards and Technology, Estados Unidos da América;

Quench – Indicador da perda de energia por absorção em soluções cintiladoras, que não é convertida em informação útil por meio da liberação de fótons de fluorescência;

SCA – Single Channel Analyser (Analisador monocanal);

SI – Sistema Internacional de Unidades;

SEMRI – Serviço de Metrologia das Radiações Ionizantes do LNMRI/IRD/CNEN;

SEMRA – Serviço de Metrologia de Radionuclídeos do LNMRI/IRD/CNEN;

SQPE – Spectral Quench Parameter of the External Standard, indicador usado para determinar o Quench no espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC;

TDCR – Triple to Double Coincidence Ratio, método para padronização de soluções radioativas por cintilação em meio líquido, que se baseia na relação entre medições em coincidências duplas e triplas;

VYNS – Película plástica constituída de Cloreto de Polivinila.

## Capítulo 1.

### INTRODUÇÃO

#### 1.1 – Preâmbulo

A Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN é uma Autarquia Federal que tem a responsabilidade de controlar, fiscalizar e fomentar as atividades que envolvam o uso pacífico da energia nuclear no Brasil. Possui em sua estrutura organizacional cinco institutos de pesquisas e também Centros Regionais em vários estados brasileiros. Dentre seus institutos de pesquisas existe o Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD, que tem a seguinte missão:

*“Atuar com excelência nas áreas de radioproteção, dosimetria e metrologia, gerando e disseminando conhecimento e tecnologia para o uso seguro das radiações ionizantes, visando a melhoria da qualidade de vida no país.”*

A estrutura funcional do IRD está subdividida em diferentes modalidades de Serviços de natureza técnica e científica, que são executados em seus diversos laboratórios. Dentre os Serviços do IRD existem o Serviço de Metrologia das Radiações Ionizantes – SEMRI e o Serviço de Metrologia de Radionuclídeos – SEMRA, ambos executados no Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes – LNMRI, que em 1989 recebeu do Instituto Nacional de Metrologia – INMETRO, Instituição Federal responsável pelas atividades metrológicas no Brasil, a designação para atuar como Laboratório Nacional na área de metrologia das radiações ionizantes. O LNMRI tem como objetivo principal prover rastreabilidade metrológica de suas atividades com o Bureau International des Poids et Mesures – BIPM.

Dentre as atribuições do LNMRI/IRD/CNEN, estão a manutenção de padrões, desenvolvimento e implantação de métodos de padronização relacionados à área da metrologia das radiações ionizantes e de radionuclídeos, bem como o relacionamento

técnico-científico com outras instituições nacionais e internacionais que atuam nestas áreas do conhecimento científico.

Dentre as atribuições do SEMRA/LNMRI/IRD, estão a implantação e manutenção de padrões e métodos de padronização relacionados especificamente à metrologia de radionuclídeos, bem como o relacionamento técnico-científico com outros laboratórios que atuam na mesma área, em instituições nacionais e internacionais.

O presente trabalho foi planejado e executado nos laboratórios de pesquisas pertencentes ao SEMRA/LNMRI/IRD/CNEN.

## 1.2 – Importância do trabalho

A crescente utilização de radionuclídeos, nas diferentes aplicações, exige fontes emitindo radioatividade com valores confiáveis e precisos, para isso torna-se necessário dispor de sistemas de calibração que operem métodos de padronização rastreados à cadeia metrológica internacional.

Entre os métodos de padronização utilizados, destacam-se os que são capazes de determinar absolutamente a grandeza Atividade, sem a necessidade de se referenciar a métodos de outros sistemas de calibração.

O método absoluto de padronização mais difundido é o método de coincidência, que é baseado na observação de duas ou mais emissões radioativas provenientes de um mesmo radionuclídeo. Na maioria das vezes é composto por dois detectores e respectivas vias de equipamentos eletrônicos, cada uma associada a um determinado tipo de radiação produzidas em desintegrações sucessivas, tais como  $\beta$ - $\gamma$ ,  $\alpha$ - $\gamma$ ,  $ec$ - $\gamma$ ,  $\gamma$ - $\gamma$ ,  $\gamma$ -X ou outras combinações equivalentes. Existe também uma variação de padronização absoluta por meio da observação num analisador multicanal de um determinado fóton  $\gamma$  em coincidência com o Pico-soma produzido por um outro evento qualquer proveniente do mesmo

decaimento radioativo, como por exemplo, a soma dos fótons de aniquilação após a emissão de um  $\beta^+$ .

Outro método absoluto desenvolvido mais recentemente é o método TDCR, que funciona com três fotomultiplicadoras e se baseia nas relações existentes entre as coincidências duplas e triplas, provenientes de medições obtidas com detecção por cintilação em meio líquido.

Existe ainda o método CIEMAT–NIST, que utiliza duas fotomultiplicadoras em coincidência e também se baseia em detecção usando cintiladores líquidos.

O método CIEMAT–NIST necessita que o sistema de calibração seja submetido à radiação de uma solução padrão para caracterizar sua resposta e, em função desta, padronizar soluções de qualquer outro radionuclídeo. Na prática pode ser considerado um método semi-absoluto, pois como necessita de somente uma solução-padrão, é relativo só para o radionuclídeo desta solução e ao mesmo tempo absoluto para as soluções contendo os demais radionuclídeos.

O método CIEMAT–NIST não exige sempre a aquisição de módulos eletrônicos especializados, podendo também ser implantado usando equipamento comercial, os quais normalmente dispõem de elevado grau de automação e muitas facilidades de análise.

Ao longo do tempo o SEMRA/LNMRI/IRD/CNEN vem ampliando sua capacidade de determinar a concentração de atividade de soluções contendo radionuclídeos e para isso tem implantado em suas rotinas técnicas diferentes sistemas e métodos que possibilitam a padronização de amostras radioativas; são eles: dois sistemas absolutos usando o método de coincidência  $4\pi\beta\text{--}\gamma$  operando com detectores proporcionais, um de fluxo gasoso normal e o outro de fluxo gasoso pressurizado; um sistema absoluto usando o método de anti-coincidência com a técnica de cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível; um sistema semi-absoluto usando o método CIEMAT–NIST e detecção com cintiladores líquidos, implantado em equipamento comercial; um sistema relativo usando o método de

Espectrometria  $\gamma$ -X com detector de estado sólido, construído com cristal de germânio de alta pureza; um sistema relativo usando o método da Câmara de Ionização; um sistema relativo usando um Ativímetro comercial; e também, em fase de implantação, um sistema absoluto usando o método TDCR e detecção com cintiladores líquidos.

Embora o SEMRA/LNMRI/IRD/CNEN disponha de uma variedade de métodos e sistemas, existem lacunas que ao serem preenchidas podem melhorar ainda mais sua capacidade de padronização de amostras radioativas, das quais as três mais importantes são as seguintes: não existe implantado um sistema que possibilite rotineiramente a padronização de amostras com radionuclídeos que não emitem partículas diretamente detectáveis e que podem ser padronizadas absolutamente com o método de coincidência fóton-fóton; não existe a possibilidade de estudos experimentais detalhados usando o método CIEMAT-NIST implantado em equipamento comercial; e por último não existe a possibilidade de estudos e comparação por meio de observação simultânea de um mesmo evento por diferentes métodos de padronização com características técnicas complementares.

### **1.3 – Objetivo do trabalho**

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento e a implementação de um sistema para calibração de soluções radioativas, que possibilite ao Laboratório Nacional das Radiações Ionizantes – LNMRI/IRD operar, isolada ou simultaneamente, com diferentes métodos de padronização da atividade em amostras contendo radionuclídeos com pelo menos uma das seguintes características: tenham esquemas de decaimento complexos, capturam elétrons, com alta emissão de raios X e são utilizados em aplicações médicas.

Este trabalho possibilitará ao Serviço de Metrologia das Radiações Ionizantes – SEMRA/LNMRI/IRD/CNEN dispor de um sistema operando em coincidência  $\gamma$ -X com melhores condições para padronização de soluções contendo radionuclídeos que emitam fótons com energia abaixo de 100 keV, pois utiliza um detector de germânio com janela

finas de berílio, ideal para os fótons de baixa energia como os raios X, e um Iodeto de sódio, para os fótons mais energéticos como as radiações  $\gamma$ .

Outro objetivo deste trabalho será a criação da possibilidade de observação simultânea dos eventos provenientes do decaimento radioativo, realizado por métodos com características específicas de detecção e padronização, cada um podendo abordar de forma diferente determinados aspectos do radionuclídeo estudado.

Com as características de simultaneidade implementadas neste novo sistema de medição será melhorada a capacidade de análise nas padronizações de soluções radioativas que decaem por captura eletrônica, fenômeno que ainda apresenta discrepâncias consideráveis, acima de 1% para radionuclídeos mais problemáticos, nas comparações de resultados entre diferentes sistemas de padronização existentes nos laboratórios internacionais.

#### **1.4 – Organização do trabalho**

Neste trabalho, o ambiente para medições foi projetado para permitir usar amostras radioativas confeccionadas de diferentes maneiras; variando desde uma simples amostra sólida selada, passando pela alternativa de usar diretamente uma ampola de vidro preenchida com a solução radioativa, até a capacidade de trabalhar com um frasco contendo um coquetel cintilador dentro de uma célula especial para detecção por cintilação em meio líquido.

Optou-se também dar ao ambiente para medições a capacidade de flexibilizar ao máximo a utilização dos diferentes métodos de calibração/padronização. Com isso tornou-se possível os seguintes arranjos experimentais:

- utilização individual do sistema de calibração por espectrometria gama só com o detector de germânio;
- utilização individual do sistema de padronização  $\gamma$ -X com o método de coincidência, sendo possível a construção da curva de eficiência pelo afastamento dos dois detectores

- ou com a colocação de absorvedores entre cada um isoladamente ou em conjunto;
- utilização individual do sistema de padronização  $\gamma$ -X com o método de anti-coincidência, construindo a curva de eficiência pelo afastamento das duas fotomultiplicadoras no interior da célula de detecção por cintilação em meio líquido;
  - utilização em conjunto dos sistemas de padronização  $\gamma$ -X com os métodos de coincidência e anti-coincidência, sem prejudicar suas características individuais na construção das respectivas curvas de eficiência;
  - utilização individual do sistema de padronização pelo método CIEMAT-NIST, usando dentro de uma célula especial para detecção por cintilação em meio líquido um frasco com o coquetel cintilador;
  - utilização conjunta dos sistemas de padronização dos métodos citados anteriormente com o método CIEMAT-NIST, em diferentes combinações, e sem prejudicar suas características individuais de medição e calibração/padronização de cada método.

Nos próximos capítulos serão tratados os seguintes assuntos:

- no Capítulo 2, entre os itens 2.1 ao 2.7.6, serão apresentados os fundamentos teóricos que se relacionam direta ou indiretamente com as áreas do conhecimento científico que servem como base para os sistemas de padronização abordados neste trabalho e que foram considerados como importantes para melhor compreensão do texto;
- No Capítulo 2, entre os itens 2.8 ao 2.10, serão apresentados os fundamentos teóricos que se relacionam diretamente com a metodologia dos sistemas de padronização abordados neste trabalho;
- No Capítulo 3 serão apresentados os procedimentos utilizados desde a construção do *setup* de medições até a realização das experiências de medição e padronização das amostras radioativas usadas neste trabalho;
- No Capítulo 4 serão apresentados os resultados obtidos e as comparações destes com as calibrações realizadas por outros sistemas equivalentes e/ou valores de referência adotados;
- No Capítulo 5 serão apresentadas as conclusões do trabalho.

## Capítulo 2.

### FUNDAMENTOS TEÓRICOS

#### 2.1 – Metrologia de Radionuclídeos

A Metrologia de Radionuclídeos pode ser entendida como a área do conhecimento científico que estuda os radionuclídeos em seus respectivos modos de decaimento radioativo, visando a elaboração de métodos e técnicas capazes de realizar medições de sua radioatividade com o maior grau possível de precisão e exatidão.

A principal grandeza física de interesse ligada à radioatividade é a *atividade* ou *taxa de desintegração*, definida pelo National Council on Radiation Protection [NCRP,1985] como:

*“A atividade de uma fonte radioativa contendo um radionuclídeo, num dado estado específico de energia e num dado instante, é o valor esperado, naquele instante, do número de transições nucleares espontâneas, na unidade de tempo, daquele estado de energia”.*

Em 1991, o Sistema Internacional de Unidades – SI [BIPM,1991] propôs uma unidade em termos de emissão radioativa por segundo para dimensionar a grandeza atividade; a esta unidade [ICRU,1980], representando uma transformação por segundo segundo ( $s^{-1}$ ), foi dado o nome especial de Becquerel – Bq, em homenagem ao físico francês descobridor da radioatividade.

Em 1896 Becquerel (o físico francês Antonie Henri Becquerel – 1852 a 1908) tentava associar o brilho dos tubos de raios catódicos com a fosforescência de alguns sais, depositando-os sobre um filme fotográfico virgem e selado, quando observou que ao usar amostras de urânio o filme ficava negro mesmo na ausência de luz e concluiu que a causa era uma radiação desconhecida proveniente do urânio, os raios X.

Inicialmente a unidade para dimensionar a atividade de uma amostra foi definida como àquela emitida por um grama de rádio (com  $3,7 \times 10^{10}$  desintegrações por segundo – dps), posteriormente denominada Curie – Ci em homenagem à Marie Curie (a físico-química polonesa Maria Sklodowska – 1867 a 1934), pioneira nas pesquisas com a radioatividade

de amostras contendo sais de urânio, realizadas em Paris entre 1896 a 1898. Portanto  $1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq}$  e seu uso é admitido pela Conferência Geral de Pesos e Medidas – CGPM por ser uma unidade fora do SI ainda bastante disseminada, principalmente na área da medicina nuclear.

## 2.2 – O Decaimento Radioativo

Quando um átomo se encontra em desequilíbrio energético, normalmente ele busca alguma maneira de se equilibrar liberando energia, tentando manter a integridade de sua estrutura. Dependendo da quantidade de energia a ser liberada, partículas sub atômicas e/ou um quantum de energia eletromagnética poderão ser emitidos pelo átomo instável.

A unidade de energia usada nos fenômenos atômicos é o elétron Volt – eV e sua equivalência no SI é dada pela equação  $1\text{eV} = 1,602 \times 10^{-19} \text{ Joules}$ .

Se o excesso de energia for suficiente para criação e liberação de um elétron, o núcleo pai poderá emitir uma partícula beta ( $\beta^+$  ou  $\beta^-$ ); caso o desequilíbrio energético corresponda a uma energia maior que a massa de dois prótons e dois nêutrons, o núcleo pai poderá emitir uma partícula alfa ( $\alpha$ ); ou ainda, caso a instabilidade seja muito grande, se fissionar emitindo nêutrons e criando dois núcleos filhos de menor massa. Existe também a possibilidade do núcleo buscar o equilíbrio capturando algum elétron das camadas mais internas do átomo, que ao preencher a vacância criada emitirá um fóton ou um elétron Auger.

Se o núcleo ainda permanecer excitado após a emissão de uma partícula, o átomo filho poderá emitir uma radiação gama ( $\gamma$ ) ou transferir sua energia de excitação ( $E_{exc}$ ) para um elétron com energia de ligação  $E_B$ , emitido um elétron de conversão interna com energia  $E_c = E_{exc} - E_B$ .

Sempre que houver uma captura eletrônica ou a emissão de um elétron haverá a criação de vacâncias na eletrosfera atômica seguidas da emissão de raios X característicos. Isto

ocorrerá porque cada vacância criada em um determinado orbital será ocupada por um elétron pertencente a um orbital de menor energia, que por sua vez produzirá uma nova vacância a ser ocupada e o processo se repetirá sucessivamente em direção aos orbitais mais externos do átomo filho. Os raios X emitidos serão caracterizados pela diferença de energia existente entre cada par de orbitais que forem sendo envolvidos no processo.

Nas medições da radioatividade de uma amostra observa-se que o valor da sua atividade  $A$  decresce ao longo do tempo, sendo então proporcional ao número  $N$  de átomos radioativos existentes, logo seu valor deriva-se das equações abaixo:

$$A = \frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2.1)$$

$$N_t = N_0 \exp(-\lambda t) \quad (2.2)$$

em que:  $N_0$  é o número de átomos radioativos existentes no tempo  $t = 0$ ;  $N_t$  é o número de átomos radioativos existentes em um tempo  $t > 0$ ; e  $\lambda$  é a constante de decaimento, característica específica de cada elemento radioativo;

É interessante conhecer quando uma amostra radioativa tem a metade do valor inicial de seus radionuclídeos, ou seja quando  $N = N_0 / 2$ . Neste caso, a radioatividade da amostra estará na metade de sua vida útil e serão válidas as equações:

$$\frac{N_0}{2} = N_0 \exp\left(-\lambda T_{\frac{1}{2}}\right) \quad (2.3)$$

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad e \quad N_t = N_0 \exp\left(-t \frac{\ln 2}{T_{\frac{1}{2}}}\right) \quad (2.4)$$

Como o tempo correspondente à meia-vida –  $T_{1/2}$  também é característico de cada radionuclídeo, na prática o seu valor é normalmente usado no lugar da constante de decaimento  $\lambda$ .

### 2.3 – O Decaimento $\alpha$

Em 1899 Rutherford (o físico-químico neozelandês Ernest Rutherford – 1871 a 1937) mostrou que os minerais de urânio emitiam partículas com alcance que podiam ser divididas em pelo menos dois grupos: um denominado raios  $\alpha$ , o de menor poder de penetração, e o outro raios  $\beta$ , o mais penetrante. Usando campo eletro-magnético e para verificar o grau de deflexão das partículas  $\alpha$  emitidas pelo *Ra* e seus filhos, Rutherford mostrou que eram emitidas com um décimo da velocidade da luz, tinham carga elétrica positiva e apresentavam uma razão carga/massa em torno de 1 / 4.000 quando comparada com a razão  $e/m_0$  para o elétron. Em 1908 Rutherford e Hans Geiger (o físico alemão Johannes Wilhelm Geiger – 1882 a 1945) contando as partículas  $\alpha$  emitidas por um grama de *Ra* determinaram que cada uma possuía carga igual a  $2e$  ( RUTHERFORD & GEIGER, 1908). Em 1909 Rutherford e T. Royds (o químico inglês Thomas Royds – 1884 a 1955) mostraram que as partículas  $\alpha$  eram íons de *He* projetados em altíssima velocidade durante o decaimento radioativo. Até a descoberta da fissão espontânea do *U* em 1940, pelos físicos soviéticos Georgy Flyorov – 1913 a 1990 e Konstantin Pietrzak – 1907 a 1998, o decaimento  $\alpha$  era o único tipo de decaimento radioativo conhecido.

Inicialmente a energia das partículas era normalmente especificada em termos do alcance em centímetros no ar à  $15^0$  C e 760 mm de *Hg*. Poucas substâncias, especialmente o *Po* ( $^{210}Po$ ), *ThC* ( $^{212}Bi$ ), *ThC'* ( $^{212}Po$ ) e *RaC'* ( $^{214}Po$ ), tinham sua energia cinética determinada por deflexão magnética, conforme mostra a tabela 2.1 (EVANS, p. 512), cujos valores serviram como referência para os experimentos da época.

Tabela 2.1 - Dados conhecidos antes de 1954 sobre os emissores  $\alpha$ .

<i>Emissor</i>	<i>Alcance médio no ar a 150 °C e 760 mm Hg (<math>\pm 0,007</math>)</i>	<i>Velocidade inicial (<math>10^9</math> cm/s <math>\pm 0,0001</math>)</i>	<i>Energia Cinética (MeV <math>\pm 0,001</math>)</i>
Po ( $^{210}\text{Po}$ )	3,842	1,5967	5,298
RaC' ( $^{214}\text{Po}$ )	6,907	1,9215	7,680
ThC' ( $^{212}\text{Po}$ )	8,570	2,0535	8,776

Imaginava-se até 1930 que os radionuclídeos só emitiam partículas  $\alpha$  monoenergéticas, na faixa entre 4 a 6 MeV, até que o trabalho de Rosenblum (EVANS, p. 512) com deflexão magnética dos  $\alpha$  emitidos pelo ThC ( $^{212}\text{Bi}$ ) mostrou que na realidade consistiam de um grupo de linhas monoenergéticas estreitamente espaçadas uma da outra, conforme ilustra a figura 2.1. Estas linhas ficaram conhecidas como a estrutura fina do espectro alfa.

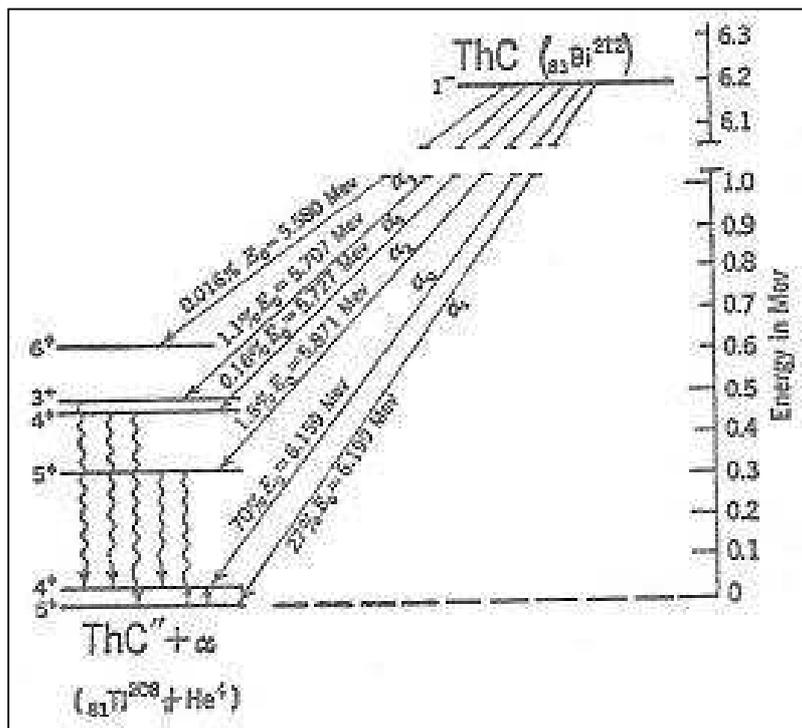


Figura 2.1 – Esquema de desintegração  $\alpha$  do  $^{212}\text{Bi}$  para o  $^{208}\text{Tl}$  (EVANS, p. 515).

O processo do decaimento  $\alpha$  ocorre para núcleos pesados e espontaneamente só a partir de núcleos com  $Z > 82$ , em que um determinado núcleo  $X$ , com número atômico  $Z$  e número de massa  $A$ , emite 2 prótons e 2 neutrons na forma de uma partícula  $\alpha$  e se

transforma no núcleo  $Y$ , com número atômico  $Z - 2$  e número de massa  $A - 4$ . Este processo é simbolizado pela reação  ${}^A_Z X \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} Y$ .

## 2.4 – O Decaimento $\beta$

### 2.4.1 – Histórico

Em 1907, nos trabalhos experimentais com as características de absorção dos raios  $\beta$ , foi observado que o aumento da espessura de absorvedor colocado entre a fonte e o sistema de detecção reduzia exponencialmente a fração transmitida das partículas até chegar a zero. Este comportamento diferia do processo de absorção da radiação  $\alpha$ , a única radiação corpuscular conhecida da época, que apresentava uma curva de absorção de forma inicialmente quase linear, passando por um acréscimo acentuado ao alcançar espessuras de absorvedor próximas ao alcance definido pela energia da partícula e, a partir deste ponto, caindo bruscamente para zero, formando uma espécie de joelho (ver exemplo na figura 2.2).

Os estudos com deflexão magnética, realizados por W. Wilson, J. A. Gray e J. Chadwick (EVANS, p. 536) em 1914, mostraram que o espectro da radiação  $\beta$  era contínuo (ver exemplo na figura 2.3) e forneceram uma explicação qualitativa dos problemas originalmente "misteriosos" envolvendo a sua absorção e espalhamento.

Os trabalhos de Frederick Soddy, Bertram Borden Boltwood e outros (EVANS, p. 539), mostraram que o decaimento  $\beta$  vinha acompanhado de uma variação nas propriedades químicas dos núclídeos envolvidos, correspondendo à mudança de uma unidade no número atômico entre o núcleo pai e o núcleo filho.

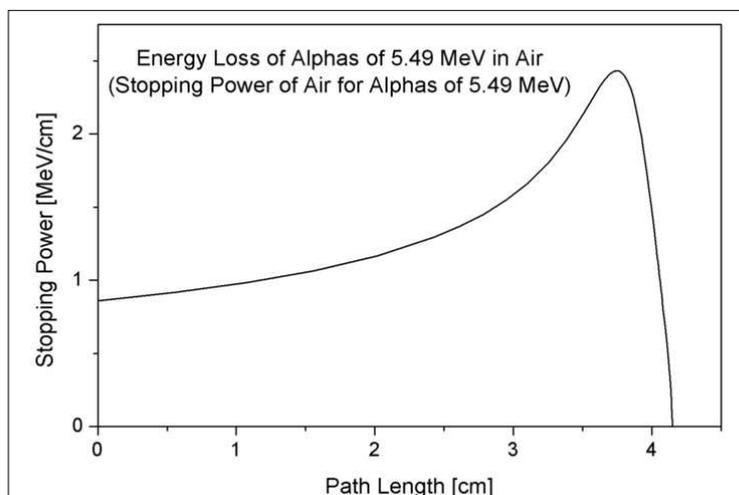


Figura 2.2 – Curva de absorção no ar para uma partícula  $\alpha$  de 5,48 MeV.

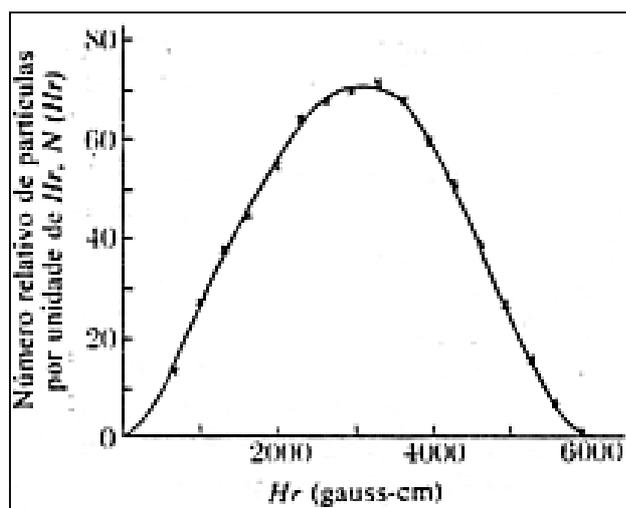


Figura 2.3 – Espectro  $\beta$  obtido em espectrômetro magnético com uma amostra de  $^{24}\text{Na}$  (KAPLAN, p. 294).

Como no caso das partículas  $\alpha$ , a diferença de energia entre os núclídeos pai e filho era sempre a mesma para todos os átomos da mesma amostra, imaginou-se então que o espectro contínuo observado na emissão das partículas  $\beta$  devia-se à perdas de energia ao atravessar a nuvem de elétrons nos átomos da amostra antes de ser detectada. Ou seja, o

espectro contínuo observado seria um espectro secundário e o espectro primário seria discreto, como o das partículas  $\alpha$ , com energia correspondente a energia máxima observada.

Se de fato o espectro contínuo fosse secundário e o primário realmente constituído de partículas  $\beta$  emitidas com a mesma energia, então a energia média das partículas deveria ser igual à energia máxima do espectro. Como parte da energia das partículas liberadas teriam sido dissipadas no interior da amostra em forma de calor, então seria possível observá-la com um calorímetro e o valor encontrado deveria ser próximo ao valor da energia máxima do radionuclídeo.

Em 1927 diversos pesquisadores (EVANS, p. 540), através de experimentos com um microcalorímetro e uma fonte de energia máxima = 1,17 MeV ( $^{210}\text{Bi}$  – conhecido na época por Rádio E), obtiveram os seguintes valores para a energia média deste radionuclídeo :  $(0,35 \pm 0,04)$  MeV ;  $(0,34 \pm 0,02)$  MeV e  $(0,320 \pm 0,005)$  MeV. Ao perceberem que os valores encontrados estavam bem abaixo do esperado, concluíram então que o espectro de emissão observado não era um espectro secundário e que as partículas  $\beta$  eram mesmo emitidas com diferentes energias até atingirem um valor máximo, aparentemente contrariando o princípio da conservação de energia. Este raciocínio baseava-se no fato de que a partir de um grupo de átomos iguais, de um mesmo tipo de radionuclídeo pai, não haveria emissão de partículas  $\beta$  com energias diferentes, uma vez que a energia liberada, no decaimento para um outro grupo de radionuclídeo filho, é sempre constante.

Em 1931 Pauli (o físico austríaco Wolfgang Ernst Pauli – 1900 a 1958) propôs que a conservação da energia não estaria sendo violada, caso simultaneamente fosse emitida outra partícula com energia igual à diferença entre a energia da transição nuclear e a energia da partícula  $\beta$ . Esta nova partícula (o neutrino) teria massa desprezível, não teria carga e possuiria um grande poder de penetração, sendo de difícil detecção.

Baseando-se então na hipótese de Pauli sobre a existência do neutrino, Fermi (o físico italiano Enrico Fermi – 1901 a 1954) propôs em 1934 uma teoria (ver item abaixo) consistente para explicar o processo do decaimento  $\beta$  e o sucesso obtido foi visto como uma evidência da possível existência do neutrino, levando a uma grande quantidade de trabalhos teóricos e experimentais para descobrir esta nova partícula, que teve a sua existência posteriormente comprovada, como no trabalho de Raymond Davis Jr. (EVANS, p. 544, 913).

R. Davis (o físico-químico americano Raymond Davis Jr. – 1914 a 2006) usou um analisador eletrostático para medir a energia cinética do afastamento de um íon de  ${}^7\text{Li}$  e obteve um espectro com pico de energia em  $(56 \pm 1)$  eV (ver figura 2.4). O  ${}^7\text{Be}$  ao capturar um elétron e emitir um neutrino de 0,38 MeV, decai no  ${}^7\text{Li}$  metaestável, que após  $0,8 \times 10^{-13}$  s emite um  $\gamma$  de 0,48 MeV. Davis combinou vetorialmente o momento do neutrino com o espectro  $\gamma$  e obteve uma distribuição contínua de energia até 57 eV, o que mostrou ser consistente com a hipótese de emissão de um neutrino de massa igual a zero para cada elétron capturado.

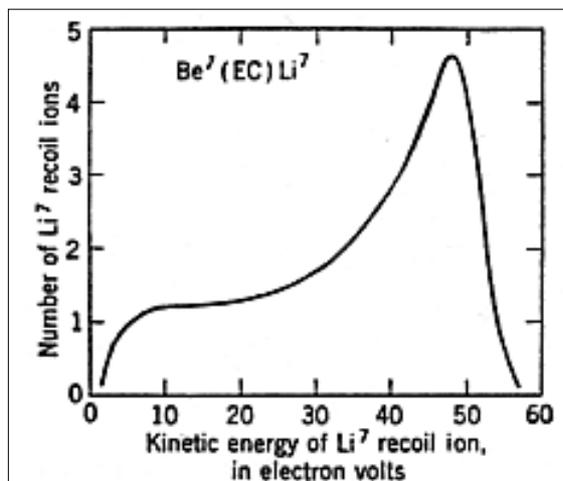


Figura 2.4 – Espectro da energia de recuo do  ${}^7\text{Li}$ , após uma captura eletrônica pelo  ${}^7\text{Be}$  (EVANS, p. 544).

### 2.4.2 – A teoria de Fermi

Após J. Chadwick (o físico britânico James Chadwick – 1891 a 1974) comprovar a existência do nêutron em 1932, foi possível compreender que o fenômeno do decaimento  $\beta^-$  era essencialmente um processo nuclear envolvendo a transformação de um próton num nêutron. Baseando-se então na hipótese de Pauli sobre a existência do neutrino, Fermi desenvolveu a primeira teoria que conseguiu explicar satisfatoriamente a forma observada nos espectros experimentais dos emissores  $\beta^-$  e também dos emissores  $\beta^+$ , após a descoberta da radioatividade artificial em 1934 pelo casal Jean Frédéric Joliot – 1900 a 1958 e Irène Curie – 1897 a 1956 (filha de Marie Curie). O processo do decaimento  $\beta$  pôde então ser representado pelas transformações



A probabilidade de emissão de uma partícula  $\beta$  com momento entre  $p$  e  $(p + dp)$  é dada por  $N(p) dp$  e no instante da transição nuclear serão criados um elétron  $\beta$  e um neutrino  $\nu$ , sendo a função de onda plana do elétron, relativa à posição central do núcleo, representada por  $\psi_e(0)$  e a correspondente ao neutrino por  $\psi_\nu(0)$ .

O comportamento dos núcleons em transformação, no volume  $V$ , é representado pela matriz de transição  $M = \int \psi_{\text{inicial}}^* O \psi_{\text{final}} dV$ , sendo  $O$  um operador apropriado (EVANS, p. 543, 548) para as possíveis formas de correlação angular entre o neutrino e a partícula  $\beta$ , indicadas na tabela 2.2.

Tabela 2.2 – Formas de correlação angular entre a partícula  $\beta$  e o neutrino.

$1 + (v / 3c) \cos \varphi$	Tensor
$1 - (v / c) \cos \varphi$	Escalar
$1 - (v / c) \cos \varphi$	Pseudo escalar
$1 - (v / 3c) \cos \varphi$	Vetor axial
$1 - (v / c) \cos \varphi$	Escalar

Na tabela 2.2  $v$  é a velocidade da partícula  $\beta$ ,  $c$  é a velocidade da luz e  $\varphi =$  ângulo entre a direção de emissão do neutrino e da partícula  $\beta$ .

A matriz  $M$  representa a medida da probabilidade relativa de que um determinado núcleo se transforme emitindo uma radiação  $\beta$  e  $|M|^2$  representa o grau de entrelaçamento das funções de onda dos nucleons em seus estados iniciais e finais, para as transições permitidas.

O formato característico do espectro, equivalente a um sino, entre os momentos  $p$  e  $(p + dp)$  é dado pelo fator estatístico  $dn / dE_0$ , conforme a equação (EVANS, 1979, p. 550) abaixo :

$$\boxed{\frac{dn}{dE_0} = \frac{16\pi^2 m_0^5 c^4}{h^6} \eta^2 (W_0 - W)^2 d\eta} \quad (2.5)$$

Nesta equação:  $c$  é a velocidade da luz,  $m_0$  é a massa de repouso da partícula  $\beta$ ,  $h$  é

a constante de Planck,  $W \equiv \frac{m}{m_0} = \frac{E + mc^2}{m_0 c^2} = \frac{E(\text{MeV})}{0,511 \text{MeV}} + 1$  e  $\eta \equiv \frac{p}{m_0 c} = \frac{mv}{m_0 c}$ .

Portanto, a equação final da probabilidade de emissão da partícula  $\beta$  com momento entre  $p$  e  $(p + dp)$  será expressa (EVANS, p. 548) por:

$$\boxed{N(p)dp = \frac{2\pi}{\hbar} (|\psi_e(0)| |\psi_\nu(0)| |M| g)^2 \frac{dn}{dE_0} s^{-1}} \quad (2.6)$$

Nesta equação  $\hbar = h/2\pi$  e  $g$  é uma nova constante com valores aproximados de  $1,374 \times 10^{-49} \text{ cm}^3 \cdot \text{erg}$ , para as regras de seleção de Fermi, e  $1,6 \times 10^{-49} \text{ cm}^3 \cdot \text{erg}$ , para as regras de seleção de Gamow-Teller. A constante  $g$  ficou conhecida como Constante de Fermi.

Quando se normaliza o momento linear ( $p = mv$ ) em relação à energia de repouso do elétron ( $m_0 c^2$ ) pode-se expressá-lo por  $\eta = \frac{mv}{m_0 c^2}$  e introduzir na equação o fator  $F(Z, \eta)$  representando a ação das forças de atração coulombianas sobre as partículas emitidas. Neste caso, a equação da probabilidade de emissão  $\beta$  será dada por (Evans , p. 553):

$$N(\eta)d\eta = \frac{64\pi^2 m_0^4 g^2}{h^7} |M|^2 F(Z, \eta) \eta^2 (W_0 - W)^2 d\eta \quad (2.7)$$

Relacionando a energia total  $W$  com o momento  $\eta$ , através da expressão  $W^2 = \eta^2 + 1$ , obtém-se (EVANS, p. 893)  $W dW = \eta d\eta$  e  $F(Z, \eta) = F(Z, W)$ , portanto a probabilidade de emissão da partícula  $\beta$  em transições permitidas e com energia entre  $W$  e  $W + dW$  será dada por

$$N(W)dW = \frac{64\pi^2 m_0^4 g^2}{h^7} |M|^2 F(Z, W) (W^2 - 1)^{1/2} (W_0 - W)^2 W dW \quad (2.8)$$

Outra maneira de se expressar o espectro de Fermi (TORANO, 1993, p. 4) é pela quantidade  $N(E)$  de partícula  $\beta$  em função da energia cinética  $E$ , conforme a equação

$$N(E) = CF(Z, E) \left[ (E_0 - E)^2 (E + 1) (E^2 + 2E)^{1/2} \right] \quad (2.9)$$

em que:  $E_0$  é a energia cinética máxima da partícula  $\beta$ , em unidades de  $mc^2$ ;  $C$  é o fator de forma (ver ítem 2.4.4) e  $F(Z, E)$  é o fator de correção de Coulombiana.

### 2.4.3 – O fator nuclear de correção Coulombiana

Imediatamente após a emissão, as partículas  $\beta$  começam a receber influência de forças Coulombianas provenientes de prótons e elétrons dos outros núcleos e do próprio átomo, tendo então modificada a sua forma original de espectro, determinada pelo fator estatístico  $dn/dE_0$ . As partículas  $\beta^-$  serão desaceleradas, ao serem atraídas pelos prótons, resultando em um espectro com mais partículas de baixa energia do que o esperado pelo fator estatístico, ao passo que as  $\beta^+$  serão aceleradas, ao serem repelidas pelos prótons, e produzirão um espectro com menos partículas nesta faixa de energia.

Quantitativamente esta deformação é provocada pela perturbação do campo elétrico nuclear na função de onda  $\psi_e(0)$  produzida pela partícula  $\beta$ , com efeito mais marcante na faixa de baixa energia do espectro produzido, alterando a sua probabilidade de emissão.

Considerando-se: uma partícula  $\beta$  com velocidade  $v$  e massa de repouso  $m_0$ ; velocidade da luz igual a  $c$ ;  $\eta = mv / m_0c$ ; energia total da transição  $\beta$  igual a  $W$ ; momento da partícula  $\beta$  entre  $\eta$  e  $\eta + d\eta$ ;  $W^2 = \eta^2 + 1$ ;  $v / c = \eta / W$ . Para estes dados, calcula-se a alteração na probabilidade de emissão  $\beta$  devido ao campo elétrico nuclear (EVANS, p. 551), sem levar em conta as correções relativísticas, pelo fator nuclear de correção Coulombiana

$$F_N(Z, \eta) \cong (2\pi y) / (1 - e^{-2\pi y}) \quad (2.10)$$

em que:  $y = (\pm Z) / (137 v / c) = (\pm Z \alpha \eta / W) \rightarrow +Z$  para o decaimento  $\beta^-$  e  $-Z$  para  $\beta^+$ ;  $\alpha = e^2 / \hbar c \cong 1 / 137 \rightarrow$  constante de estrutura fina;  $e^2 =$  carga do elétron ao quadrado;  $h =$  constante de Planck (em homenagem ao físico alemão Max Planck – 1858 a 1947).

A maioria dos efeitos da repulsão Coulombiana ocorrem em torno da camada K, em que a energia de ligação  $B_K \cong (Z / 137)^2 [1/2(m_0 c^2)]$ . Quando não se tem no decaimento  $B_K \ll m_0 c^2$  será necessário usar o fator de correção Coulombiana (EVANS, 1979, p. 552) na sua forma relativística, calculado por

$$F_N(Z, \eta) = \frac{4(1 + \frac{1}{2}S)}{\Gamma(3 + 2S)^2} \left( \frac{2R}{h/m_0c} \right)^{2S} \left( \eta^{2S} e^{\pi y} \left| \Gamma(1 + S + iy) \right|^2 \right) \quad (2.11)$$

em que:  $S = \sqrt{1 - (Z/137)^2} - 1 \cong -\frac{1}{2}(Z/137)^2$  é o negativo da energia de ligação da camada K, em unidades de  $m_0 c^2$ ;  $R$  é o raio nuclear;  $h/m_0c = 386 \times 10^{-13} \text{ cm}$  é o comprimento de onda Compton do elétron;  $y = (\pm Z) / (137 v/c)$  e  $\Gamma$  é a função gama calculada com parâmetros do radionuclídeo.

Quando  $Z \rightarrow 0$ ,  $F_N(Z, \eta) \rightarrow 1$ .

Para  $Z \leq 30$  e  $0,6 \leq \eta \leq 5$  a utilização do fator  $F_N(Z, \eta)$  sem correção relativística produzirá um erro menor que 5% em relação ao fator que leva em consideração a mesma correção (EVANS, 1979, p. 552).

Outra maneira de se abordar o fator de Coulomb é considerá-lo como a relação entre a densidade eletrônica no centro do núcleo filho e o infinito (TORANO, 1993, p. 5), então

$$F(Z, E) = \frac{\left| \psi_{\theta}(0) \right|_Z^2}{\left| \psi_{\theta}(0) \right|_{Z=0}^2} \quad (2.12)$$

e a equação com a correção relativística será definida pela equação

$$F(Z, E) = 2 (1 + \gamma_0) \left[ \frac{2pR}{(2pR)^2} \right]^{-2(1-\gamma_0)} e^{-\pi y} \frac{\left| \Gamma(y_0 + iy) \right|^2}{\left| \Gamma(2y_0 + 1) \right|^2} \quad (2.13)$$

em que:  $p$  é o momento linear da partícula  $\beta$ , em unidades de  $m_0c^2$ ;  $R$  é o raio nuclear;  $Z$  é o número atômico do núcleo filho;  $y_0 = (1 - \alpha^2 Z^2)^{1/2}$ ;  $y = \pm Z\alpha (1 + p^2)^{1/2}$ , com  $+Z$  para  $\beta^-$  e  $-Z$  para  $\beta^+$ ;  $\alpha = e^2 / \hbar c \cong 1 / 137$  é a constante de estrutura fina.

#### 2.4.4 – O fator de forma

Outro fator que modifica a forma caracterizada pela expressão do fator estatístico  $\frac{dn}{dE_0}$ , similar a um sino, é o fator de forma. Este fator depende da classificação da transição nuclear, em função da variação do momento angular ( $\Delta j = |j_i - j_f|$ ) e da paridade ( $\Delta \pi = \pi_i \cdot \pi_f$ ) nos estados nucleares inicial e final.

A grosso modo, as transições nucleares podem ser classificadas em :

a) permitidas – as que se enquadram na regra de seleção

$$\Delta j = |j_i - j_f| = 0 \text{ ou } 1, \text{ com paridade } \pi_i \cdot \pi_f = + 1;$$

b) proibidas – as que não se enquadram nesta regra.

B. W. Sargent (KAPLAN, p. 300), estudando a maioria dos radionuclídeos naturais emissores  $\beta$ , observou que ao colocar no eixo Y de um gráfico os logaritmos das constantes de desintegração  $\lambda$  de cada emissor, relacionados no eixo X aos logaritmos das respectivas energias máximas, a figura obtida se aproximava de duas retas distintas (ver figura 2.5) e que para um mesmo valor de energia máxima selecionado no eixo X, a reta superior do gráfico apresentava valores de  $\lambda$  aproximadamente 100 vezes maiores que os da reta inferior. Sargent então concluiu que os pontos correspondentes à curva superior representavam as transições de maiores probabilidades de ocorrência, as transições  $\beta$  permitidas, ao passo que os pontos da curva inferior correspondiam às transições menos prováveis, transições proibidas.

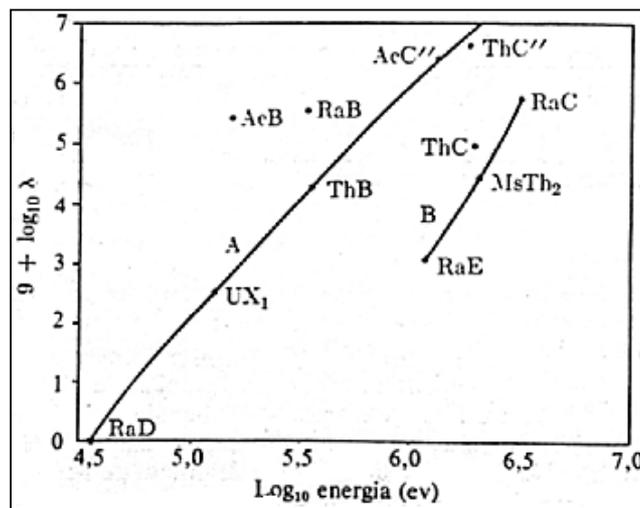


Figura 2.5 – Curvas de Sargent.

As transições proibidas, devido a mudança de momento angular e de paridade, encontram mais dificuldades de ocorrer e por isso apresentam espectros mais retardados em relação aos espectros das transições permitidas. No caso das transições proibidas foram desenvolvidos fatores de forma (EVANS p. 557; TORANO, 1993, p. 6) para cada uma das 5 possíveis correlações angulares entre o neutrino e a partícula  $\beta$ . Estes fatores –  $C_n$  ao serem aplicados à equação desenvolvida para as transições permitidas, possibilitam que esta

continue apresentando o mesmo formato teórico que os espectros obtidos experimentalmente com transições nucleares de diferentes graus de proibição.

O fator de forma correspondente às transições permitidas é a constante  $1 + \frac{S}{2}$ , que aparece na equação do fator de Coulomb  $F_N(Z, \eta)$ , e calcula-se por

$$C_0 = 1 + \frac{S}{2} \cong -\frac{1}{2} \left( \frac{Z}{137} \right)^2 \quad (2.14)$$

Para as transições com primeira proibição, pelas regras de Gamow-Teller, o fator de forma é calculado pela equação 2.15, em que  $p$  é o momento da partícula  $\beta$  e  $q$  é o momento do neutrino.

$$C_1 \cong p^2 + q^2 \cong (W^2 - 1) + (W_0 - W)^2 \quad (2.15)$$

Este fator proporcionará mais emissões de partículas nas faixas de alta e baixa energia do que o normalmente previsto para o caso das transições permitidas, conforme pode ser visto no gráfico (EVANS, p. 557 ) de Fermi-Kurie da figura 2.5.

Quando diferentes valores de  $\sqrt{N/\eta^2 F}$  são transferidos para um gráfico em função das energias cinética –  $E$  ou total –  $W$ , em que  $N$  significa  $N(\eta)$  da equação 2.7 no intervalo de momentum  $\Delta\eta$  e  $F$  significa  $F(Z, \eta)$  da equação 2.11, obtém-se uma distribuição de pontos em torno de uma linha reta que cruza o eixo das energias no valor correspondente à energia máxima  $E = E_0$  ou  $W = W_0$  da partícula  $\beta$  para o radionuclídeo considerado. A distribuição obtida é conhecida como Gráfico de Fermi-Curie, ilustradas nas figuras 2.6 e 2.7.

Na figura 2.7 pode ser observado que o Gráfico de Fermi-Kurie construído normalmente sem acrescentar o fator de forma da equação 2.15 se desvia de uma reta e mostra uma concentração maior de partículas nas regiões de baixa e alta energia; Porém quando é introduzido na equação o fator de forma para transições com primeira proibição, a distribuição volta a apresentar a forma retilínea prevista. O Gráfico de Fermi-Kurie é considerado como a validação da Teoria de Fermi para o decaimento  $\beta$ .

Para as transições com segunda proibição, como no caso do  $^{10}\text{Be}$ , o fator de forma é calculado pela equação 2.16.

$$C_2 \cong p^4 + \frac{10}{3} p^2 q^2 + q^4 \quad (2.16)$$

Para as transições com terceira proibição, como o caso do  $^{40}\text{K}$ , o fator de forma é calculado pela equação 2.17.

$$C_3 \cong p^6 + 7p^2 q^2 (p^2 + q^2) + q^6 \quad (2.17)$$

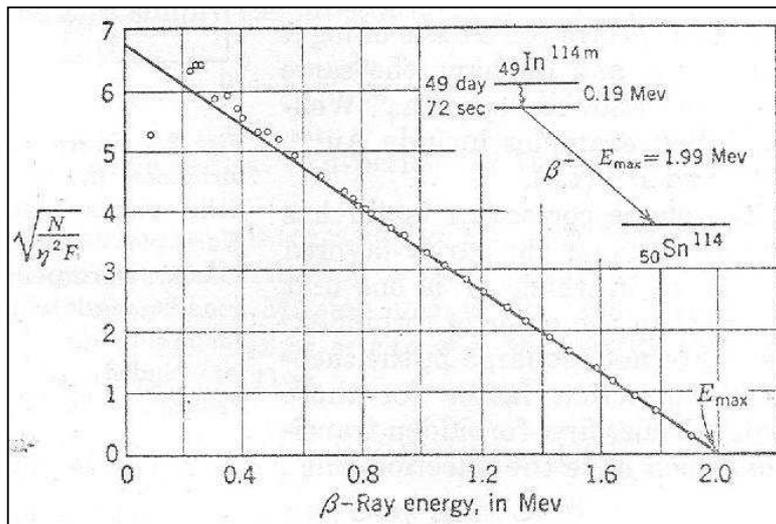


Figura 2.6 – Gráfico de Fermi-Kurie para o  $^{114m}\text{In}$  (EVANS, p. 554).

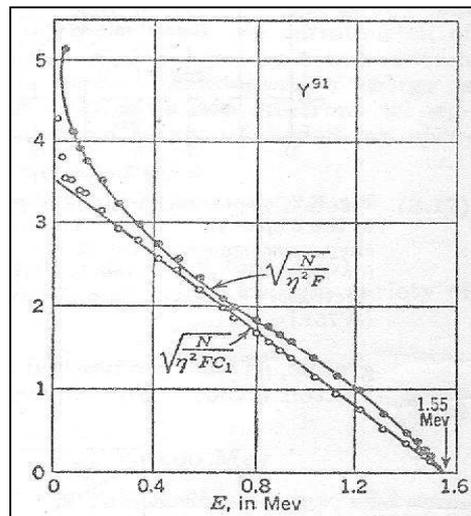


Figura 2.7 – Gráfico de Fermi-Kurie para o  $^{91}\text{Y}$  (EVANS, p. 557).

### 2.4.5 – Efeito de blindagem pelos elétrons atômicos

O potencial eletrostático dos elétrons atômicos também afeta a forma original do espectro  $\beta$  e implica na necessidade de se encontrar também uma correção para este efeito (EVANS, p. 552). Analiticamente essas correções não podem ser expressas de uma forma simples, pois envolvem soluções relativísticas para os movimentos dos elétrons, utilizando o formalismo de Dirac em um campo do átomo do tipo descrito por Thomas-Fermi, e só são possíveis através de cálculos computacionais complexos.

J. R. Raitz (EVANS, p. 552) conseguiu tabular essas correções para os elementos de número atômico 16, 29, 49, 84 e 92 (respectivamente *S*, *Cu*, *In*, *Po* e *U*) e, concordando com cálculos aproximados já existentes, verificou que este efeito exercia pouca influência sobre o espectro  $\beta^-$ , mas afetava profundamente o espectro  $\beta^+$  na faixa de baixa energia, principalmente para os elementos de número atômico elevado.

Na emissão  $\beta^-$  este efeito reduz em aproximadamente 2% a probabilidade de emissão na faixa de 50 keV, para  $Z \cong 50$ , e cresce à medida que  $Z$  cresce ou a energia decresce.

Na emissão  $\beta^+$  este efeito aumenta em aproximadamente 37% a probabilidade de emissão na faixa de 50 keV, para  $Z \cong 50$ , e aumenta por um fator de 2,9 para  $Z \cong 92$ . Neste tipo de emissão, o potencial dos elétrons atômicos têm o efeito de reduzir a altura e a espessura da barreira de potencial apresentada aos pósitrons.

### 2.5 – O Decaimento por Captura Eletrônica

Neste tipo de transição um núcleo  ${}^A_ZX$  captura um elétron de uma das camadas orbitais mais próximas, se transforma em um outro núcleo  ${}^A_{Z-1}Y$  e emite um neutrino  $\nu$  com energia  $q_x = Q^+ - E_i - E_x$ , dependente da camada orbital ( $x = K, L, M, \dots$ ) na qual ocorreu a captura.  $E_x$  é a energia de ligação do elétron no orbital do núcleo filho,  $Q^+$  é a energia correspondente à diferença de massas atômicas entre os estados fundamentais dos

núcleos pai e filho,  $E_i$  é a energia do nível nuclear resultado da captura eletrônica, logo  $Q^+ - E_i$  é a energia da transição.

Para ocorrer uma captura eletrônica, a energia de transição deve ser no mínimo igual à energia de ligação do elétron a ser capturado, ou seja  $Q^+ - E_i \geq E_x$ . Após a captura do elétron, a vacância deixada no orbital pode ser ocupada por um elétron menos ligado, com a correspondente emissão de um fóton ou de um elétron Auger (em homenagem ao seu descobridor o físico francês Pierre Victor Auger – 1899 a 1993), e ser transferida em cascata até as camadas periféricas do átomo. As energias liberadas nestes processos corresponderão sempre ao valor da energia de ligação do elétron que foi capturado.

Quando a energia de transição for suficiente para capturar elétrons em mais de uma camada, a probabilidade de captura nas camadas mais internas será sempre maior que nas camadas mais externas, ou seja

$$P_K > P_L > P_M > \dots \text{ e } P_K + P_L + P_M + \dots = 1. \quad (2.18)$$

A reordenação atômica após a criação de uma vacância por captura eletrônica na camada K, com intensidade de transição  $I_\varepsilon$ , se dá pela emissão de um raio  $X_K$  ou a emissão de um elétron Auger.

### 2.5.1 - Reordenação atômica com emissão de um raio $X_K$ após uma captura K

Considerando que um elétron de uma camada superior  $x$  ocupe a vacância deixada na camada K pela captura eletrônica, a diferença de energia entre estas duas camadas será emitida na forma de uma radiação eletromagnética de intensidade

$$E_{xK} = E_K - E_x, \quad (2.19)$$

em que  $E_K$  é a energia de ligação da camada K e  $E_x$  é a energia de ligação da camada  $x$ .

O rendimento de fluorescência  $\omega_K$ , probabilidade de emissão de um raio  $X_K$  ao ocorrer uma vacância na camada K, é calculado como

$$\omega_K = I_{xK} / n_K, \quad (2.20)$$

em que  $n_K = I_\epsilon P_K$  é o número total de vacâncias na camada. Este rendimento só depende do número atômico e é aproximadamente igual a 1, exceto para os elementos leves onde também pode variar com o estado químico e vale menos que a unidade.

A representação espectroscópica habitualmente utilizada (LOS ARCOS , 1993, p. 4) para as transições dos níveis L, M e N em direção à camada K, simbolizada na figura 2.8, é a que está indicada na tabela 2.3.

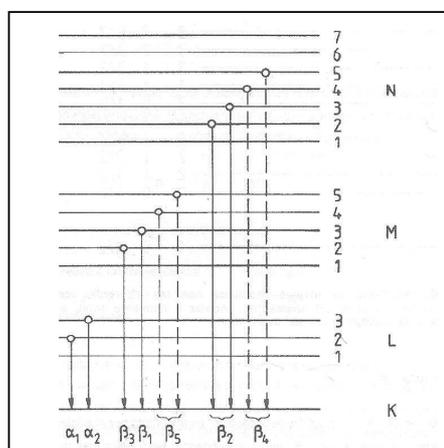


Figura 2.8 – Representação das transições entre as camadas K L M e N.

Tabela 2.3 – Representação espectroscópica de transições eletrônicas dos níveis L,M,N para o nível K.

$K_\alpha$	$K_{\alpha 2} K_{L3}$ $K_{\alpha 1} K_{L2}$	Para transições do nível L para o nível K	
$K'_{\beta 1}$	$K_{\beta 3} K_{M 2}$ $K_{\beta 1} K_{M 3}$ $K_{\beta 5''} K_{M 4}$ $K_{\beta 5'} K_{M 5}$	Para transições do nível M para o nível K	
$K'_{\beta 2}$	$K_{\beta 2}$ $K_{\beta 4}$	$K_{\beta 2''} K_{N2}$ $K_{\beta 2'} K_{N3}$ $K_{\beta 4''} K_{N4}$ $K_{\beta 4'} K_{N5}$	Para transições do nível N para o nível K

As transições  $K_{L1}$ ,  $K_{M1}$  e  $K_{N1}$  são proibidas pelas regras de seleção.

A intensidade dos raios  $X_K$  em relação à emissão mais importante ( $K_{\alpha 1}$ ) é dada pela seguinte expressão

$$I_{X_K} = \left( 1 + \frac{I_{X_{K\alpha 2}}}{I_{X_{K\alpha 1}}} + \dots \right). \quad (2.21)$$

### 2.5.2 - Reordenação atômica com emissão de elétrons Auger após uma captura K

Alternativamente à emissão do excesso de energia, entre o nível envolvido no preenchimento da vacância e o nível da camada K, em forma de uma radiação eletromagnética, o núcleo pode transferir este excesso de energia a um elétron, elétron Auger, de uma outra camada y, que será expulso do átomo com uma energia

$$E_{a(Kxy)} = E_K - E_x - E_y - \Delta E, \quad (2.22)$$

em que:  $E_K$ ,  $E_x$  e  $E_y$  são as energias de ligação nos níveis K, x e y ( $E_x \geq E_y$ ) e  $\Delta E$  é um termo corretivo introduzido devido a energia de ligação do átomo no estado excitado ser maior do que no estado fundamental.

Os elétrons Auger, substitutos dos raios X que seriam emitidos após os elétrons das camadas L, M e N saltarem para ocupar a vacância deixada na camada K, são classificados (LOS ARCOS, p. 4) como ilustrado na tabela 2.4.

Tabela 2.4: Classificação dos elétrons Auger após uma captura K.

Auger $K_{LL}$	$K_{L1L1}$ ; $K_{L1L2}$ ; $K_{L1L3}$ ; $K_{L2L1}$ ; $K_{L3L3}$
Auger $K_{Lx}$	$K_{L1M1}$ ; $K_{L1M2}$ ; $K_{L1M3}$ ; $K_{L1M4,5}$ ; $K_{L2M1}$ ; $K_{L2M2,3}$ ; $K_{L2M4,5}$ ; $K_{L3M1}$ ; $K_{L3M4,5}$ ; $K_{L1N}$ ; $K_{L2N}$ ; $K_{L3N}$
Auger $K_{xy}$	x = M, N, .....                      y = M, N, .....

A intensidade destes elétrons Auger é dada pela equação

$$I_{\varepsilon_{AK}} = I_{KLL} \left[ \frac{I_{KLx}}{I_{KLL}} + \frac{I_{Kxy}}{I_{KLL}} \right]. \quad (2.23)$$

### 2.5.3 - Reordenação atômica após uma captura L

Na transição nuclear por captura eletrônica pura, uma vacância na camada L pode ser provocada por uma captura direta nesta camada ou pela reordenação atômica proveniente de uma captura K, provocando a transferência de uma vacância ocorrida na camada K para uma na camada L. Existe também a existência de transferências de vacâncias entre as subcamadas da camada L ( $L_1 \rightarrow L_2$ ;  $L_1 \rightarrow L_3$ ;  $L_2 \rightarrow L_3$ , com probabilidades  $f_{12}$ ;  $f_{13}$ ;  $f_{23}$ ), denominadas de transição Coster-Kronig, cujo número é calculado por

$$n_L = n_{L1} + n_{L2} + n_{L3} = \sum I_{\varepsilon} P_L + n_K n_{KL}, \quad (2.24)$$

em que  $n_K$  é o número de vacâncias na camada K e  $n_{KL}$  é o número de transferências de vacâncias  $K \rightarrow L$ , que por sua vez é calculado pela expressão abaixo (LOS ARCOS, 1993, p. 5).

$$n_{KL} = \omega_K \frac{I_{K\alpha}}{I_{K\alpha} + I_{K\beta} + \dots} + (1 - \omega_K) \frac{2 + \frac{I_{KLx}}{I_{KLL}}}{1 + \frac{I_{KLx}}{I_{KLL}} + \frac{I_{KLy}}{I_{KLL}}} \quad (2.25)$$

Para cada uma das três subcamadas da camada L existe um rendimento de fluorescência  $\omega_i$  específico, que representa a probabilidade de emissão de um raio  $X_{Li}$  ao ocorrer uma vacância  $L_i$ , que é independente do número atômico e cuja soma é igual ao rendimento  $\omega_K$  da camada K.

A ocupação de uma vacância na camada L , por um elétron de uma camada x (x = M,N,...) menos ligada, pode vir acompanhada pela emissão de um raio X<sub>L</sub> de energia E<sub>XL</sub> = E<sub>L</sub> - E<sub>x</sub> ou de um elétron Auger , cujo espectro de energias compõe-se de raios praticamente indiscrimináveis. No caso de uma transição Coster-Kronig (L<sub>1</sub>→L<sub>2</sub>, L<sub>1</sub>→L<sub>3</sub>, L<sub>2</sub>→L<sub>3</sub>), esta vacância vem sempre acompanhada de um elétron Auger L<sub>i</sub>L<sub>j</sub>x com energia

$$E_{eCK}(L_i L_j x) = E_{L_i} - E_{L_j} - E_x , \quad (2.26)$$

em que i =1,2 e j =1,2 , que ocorre antes que a camada L<sub>i</sub> seja reocupada e , portanto, criando novas vacâncias ( V<sub>L1</sub> , V<sub>L2</sub> , V<sub>L3</sub>) nesta camada. As vacâncias V<sub>L<sub>i</sub></sub> , derivadas das transições Coster-Kronig , são em maior número que as vacâncias N<sub>L<sub>i</sub></sub> da camada L<sub>i</sub> e são calculadas pelas expressões abaixo:

$$V_{L1} = N_{L1} , \quad (2.27)$$

$$V_{L2} = N_{L2} + f_{12}N_{L1} , \quad (2.28)$$

$$V_{L3} = N_{L3} + f_{13}N_{L1} + f_{23}(N_{L2} + f_{12}N_{L1}), \quad (2.29)$$

em que considera-se

$$N_L = N_{L1} + N_{L2} + N_{L3} = 1. \quad (2.30)$$

#### 2.5.4 - Rendimentos médios, de fluorescência $\overline{\omega}_L$ e Auger $\overline{a}_L$ , numa captura L

O rendimento médio de fluorescência da camada L é obtido dos rendimentos  $\omega_i$  das subcamadas (  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  ,  $\omega_3$  ) ou da distribuição das vacâncias produzidas pelas transições Coster-Kronig , conforme as equações

$$\overline{\omega}_L = V_{L1}\omega_1 + V_{L2}\omega_2 + V_{L3}\omega_3 \quad (2.31)$$

$$\text{ou } \overline{\omega}_L = N_{L1} [\omega_1 + f_{12}\omega_1 + (f_{13} + f_{12} f_{23})\omega_3] + N_{L2}(\omega_2 + f_{12}\omega_3) + N_{L1}\omega_3 \quad (2.32)$$

e a intensidade  $I_L$  dos raios  $X_L$  pode ser dada por

$$I_{XL} = n_L \overline{\omega}_L . \quad (2.33)$$

O rendimento Auger médio é definido, para uma mesma distribuição inicial de vacâncias, pela relação

$$\overline{\omega}_L + \overline{a}_L = 1 \quad (2.34)$$

e portanto a intensidade  $I_{eAL}$  dos elétrons Auger da camada L pode ser dada por

$$I_{eAL} = n_L \overline{a}_L . \quad (2.35)$$

### 2.5.5 - Probabilidade de captura em transições permitidas ( $\Delta j = 0, 1$ )

Para transições permitidas a captura eletrônica só é possível na camada K e subcamadas  $L_1, L_2, M_1, M_2, N_1, \dots$  e a probabilidade de captura eletrônica por unidade de tempo, aplicando-se a teoria para o decaimento  $\beta$  para um elétron em uma camada ou subcamada  $x$  ( $x = K, L_i, M_i, N_i, \dots$ ), é da pela equação 2.36, cujos componentes estão descritos na tabela 2.5.

$$\lambda_x = \frac{g^2 |M_{0,1}|^2}{4\pi^2} q_x^2 g_x^2 B_x \quad (2.36)$$

Tabela 2.5 – Componentes da equação que calcula a probabilidade de captura eletrônica em transições permitidas –  $\lambda_x$ .

$g$	constante de acoplamento na interação fraca
$ M_{0,1} ^2$	matriz da transição nuclear
$q_x$	energia do neutrino
$f_x, g_x$	componentes das funções de onda radiais do elétron
$B_x$	fatores de intercâmbio, que incluem a influência dos efeitos atômicos sobre as probabilidades de captura

Para um átomo com número de elétrons  $Z_i$ , a probabilidade total de captura eletrônica é calculada pela equação

$$\lambda_C = Z_K \lambda_K + Z_{L1} \lambda_{L1} + Z_{L2} \lambda_{L2} + Z_{M1} \lambda_{M1} + Z_{M2} \lambda_{M2} + Z_{N1} \lambda_{N1} + \dots \quad (2.37)$$

e experimentalmente utilizando-se as probabilidades relativas das sub-camadas em relação a probabilidade total, calculadas pelas equações 2.38, cuja soma está normalizada a 1 e satisfazem às equações (LOS ARCOS, 1993, p. 9) descritas na tabela 2.6.

$$P_K = Z_K / \lambda_C ; P_{L1} = Z_{L1} / \lambda_C ; P_{L2} = Z_{L2} / \lambda_C ; P_{M1} = Z_{M1} / \lambda_C ; P_{M2} = Z_{M2} / \lambda_C \quad (2.38)$$

Tabela 2.6 – Probabilidades das sub-camadas em relação à probabilidade de captura total.

$\frac{P_L}{P_K} = \frac{P_{L1}}{P_K} \left[ 1 + \frac{P_{L2}}{P_{L1}} \right]$	$\frac{P_M}{P_L} = \frac{P_M}{P_{L1}} \frac{P_{L1}}{P_L}$	$\frac{P_{MN}}{P_L} = \frac{P_{MN}}{P_{L1}} \frac{P_{L1}}{P_L}$
$\frac{P_{MN}}{P_{L1}} = \frac{P_{M1}}{P_{L1}} \left[ 1 + \frac{P_{M2} + P_{N1} + P_{N2} + \dots}{P_{M1}} \right]$		
$\frac{P_{L1}}{P_K} = \frac{Z_{L1}}{Z_K} \frac{g_{L1}^2 q_{L1}^2 B_{L1}}{g_K^2 q_K^2 B_K}$		
$\frac{P_{L2}}{P_{L1}} = \frac{Z_{L2}}{Z_{L1}} \frac{f_{L2}^2 q_{L2}^2 B_{L2}}{g_{L1}^2 q_{L1}^2 B_{L1}} = \frac{f_{L2}^2 B_{L2}}{g_{L1}^2 B_{L1}}$		
$\frac{P_M}{P_{L1}} = \frac{P_{M1}}{P_{L1}} \left[ 1 + \frac{P_{M2}}{P_{M1}} \right] = \frac{Z_{M1}}{Z_{L1}} \frac{g_{M1}^2 q_{M1}^2}{g_{L1}^2 q_{L1}^2} \left[ 1 + \frac{Z_{M2} f_{M2}^2}{Z_{M1} g_{M1}^2} \right] \frac{B_M}{B_L}$		

### 2.5.6. Probabilidade de captura em transições com proibição única ( $\Delta j = 2, 3$ )

Para estes tipos de transições, além das camadas K, L<sub>1</sub>, M<sub>1</sub> e M<sub>2</sub>, tem-se que considerar também as camadas L<sub>3</sub>, M<sub>3</sub> e M<sub>4</sub>. A probabilidade de captura de uma camada ou sub-camada x ( x = K, L<sub>i</sub>, M<sub>i</sub>, N<sub>i</sub>, ... ) é dada pela equação 2.36 (que calcula a probabilidade de captura eletrônica para as transições permitidas), multiplicada pelo fator expresso na equação 2.39, cujos componentes estão identificados na tabela 2.7.

$$\frac{(q_K r_0)^{2(\Delta J - 1)}}{[(2\Delta J - 1)!!]^2} \quad (2.39)$$

Tabela 2.7 – Componentes da equação 2.39.

$r_0$ é o raio do núcleo em unidades de $h / m_0 c$
$\Delta J = 2, 3$
$\pi_f / \pi_i = (-1)^n ; n = \Delta J - 1$

As probabilidades de captura nas sub-camadas L<sub>1</sub> e L<sub>2</sub> são obtidas da mesma forma anterior e a da sub-camada L<sub>3</sub> obtém-se utilizando as equações descritas na tabela 2.8.

Tabela 2.8 – Equações usadas para a determinação da probabilidade de captura eletrônica com proibição única na sub-camada L<sub>3</sub>.

$\frac{P_L}{P_K} = \frac{P_{L1}}{P_K} \left[ 1 + \frac{P_{L2}}{P_{L1}} \frac{P_{L3}}{P_{L1}} \right]$
$\frac{P_{L3}}{P_{L1}} = \frac{3(\Delta J - 1)(2\Delta J - 1) g_{L3}^2 B_{L3}}{(q_{L1} r_0)^2 g_{L1}^2 B_{L1}}$
$\frac{P_L}{P_K} = \frac{g_{L1}^2 q_{L1}^{2\Delta J} B_{L1}}{g_K^2 q_K^{2\Delta J} B_K} \left[ 1 + \frac{f_{L2}^2 B_{L2}}{g_{L1}^2 B_{L1}} \frac{3(\Delta J - 1)(2\Delta J - 1) g_{L3}^2 B_{L3}}{(q_{L1} r_0)^2 g_{L1}^2 B_{L1}} \right]$

## 2.6 – O Decaimento $\gamma$

### 2.6.1 – Histórico

Em 1900 Paul Villard (o físico-químico francês Paul Ulrich Villard – 1860 a 1934) blindou uma chapa fotográfica com fina camada de chumbo e ao incidir sobre ela um feixe de radiação proveniente de amostras com sais de rádio verificou que apesar da absorção completa dos raios  $\alpha$  ainda restavam dois outros tipos de emissão: o primeiro foi identificado como raios  $\beta$ , pois tinha sua trajetória modificada na presença de um campo magnético; o segundo, então desconhecido, apresentava maior poder de penetração que o primeiro e era insensível à presença do mesmo campo. A nova emissão foi classificada em 1903 por Rutherford (o físico neozelandês Ernest Rutherford ) como raios (partículas)  $\gamma$  e em 1910 foi demonstrado por Bragg (o físico britânico William Henry Bragg – 1862 a 1942) ser na realidade uma radiação eletromagnética, cujo comprimento de onda chegava a ser menor do que o dos raios X e por isso mesmo também mais penetrantes do que estes.

A emissão  $\gamma$  ocorre quando um núcleo radioativo (pai) emite uma partícula  $\alpha$  ou  $\beta$  e se transforma num estado excitado de outro núcleo (filho), que por sua vez ao buscar sua condição de estabilidade ou de menor excitação emite o excedente na forma de um fóton de energia  $E = h\nu = h\frac{1}{\lambda}$ . Este processo em sua maioria ocorre em torno de  $10^{-12}$  segundos ou em situações específicas em que o núcleo filho permanece excitado por períodos maiores, denominados de estados metaestáveis, que duram de 100 a 1000 vezes mais que o normal, sendo então classificado como um isômero nuclear. Este decaimento também pode ocorrer quando um núcleo capturar uma partícula ou ainda após uma fissão ou fusão nuclear.

Em 1922 C. D. Ellis (o físico britânico Charles Drummond Ellis – 1895 a 1980) e L. Meitner (a física austríaca Lise Meitner – 1878 a 1968 ) mostraram que nos radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos, como o  $RaB$  ( $^{214}Pb$ ), os fótons  $\gamma$  surgidos após as emissões de partículas  $\alpha$  apresentavam frequências bem definidas e exibiam regras aditivas simples do tipo  $h\nu_1 + h\nu_2 = h\nu_3$ , sugerindo a existência de estados discretos de

energia na estrutura nuclear (Evans, 1979, p. 211) análogo aos da eletrosfera atômica, revelado por pesquisas com espectroscopia de elétrons excitados.

Quando a radiação gama ocorre após a emissão de partículas  $\beta$  são produzidos dois tipos de espectros: um discreto, similar ao produzido após a emissão de partículas  $\alpha$ , trazendo também informações sobre a estrutura do núcleo; e outro contínuo, conhecido como espectro de bremsstrahlung, sem produzir informações estruturais. Este espectro pode surgir pela aceleração da partícula  $\beta$  ao se aproximar de algum núcleo vizinho, denominado bremsstrahlung externo, ou pelo rearranjo das cargas nucleares após a partícula  $\beta$  ser emitida, denominado bremsstrahlung interno, assemelhando-se ao espectro contínuo dos raios X.

### 2.6.2 – O decaimento radioativo por meio da emissão de fótons $\gamma$

Após o desenvolvimento da teoria quântica foi possível associar a emissão  $\gamma$  com a liberação de uma onda eletromagnética multipolar, cujo momento angular e ordem de polaridade em relação ao átomo emissor ou absorvedor são determinados pelos mesmos números quânticos  $l$  (principal) e  $m$  (magnético) usados com as partículas sub-atômicas. As polaridades são representadas por  $2^l$  diferentes ordens de harmônicos esféricos e são classificadas pela quantidade de pólos da seguinte maneira: o harmônico esférico de primeira ordem corresponde a  $l = 1$  e uma propagação com  $2^1$  pólos, produzindo o momento do dipolo; o de segunda ordem corresponde a  $l = 2$  e uma propagação com  $2^2$  pólos, produzindo o momento do quadrupolo; o de terceira ordem corresponde a  $l = 3$  e uma propagação  $2^3$  pólos, produzindo o momento do octopolo ... e assim por diante (ver Anexo A).

Devido à propagação transversa das ondas eletromagnéticas, não existe ordem de polaridade zero ( $l \neq 0$ ) para fótons, sendo que o seu momento angular é igual a  $\hbar\sqrt{l(l+1)}$  e sua projeção sobre um eixo arbitrário igual a  $m\hbar$ , chegando ao valor máximo  $l\hbar$ . Como o momento angular conserva-se após a emissão ou absorção do fóton  $\gamma$ , correspondendo à

diferença vetorial entre os momentos angulares do núcleo nos estados inicial  $I_i$  e final  $I_f$ , o seu valor  $l = |I_i - I_f|$  pode ser qualquer número inteiro diferente de zero, conforme a regra

$$\Delta I \equiv |I_i - I_f| \leq l \leq I_i + I_f$$

e sendo  $l \neq 0$  também não é possível existir transição entre dois níveis  $I_i = I_f = 0$ . Da mesma forma o número quântico magnético da radiação  $\gamma$  corresponde à diferença entre os números quânticos do momento magnético nuclear nos estados inicial  $I_i$  e final  $I_f$ , sendo calculado por  $m = m_f - m_i$ .

Para cada ordem de polaridade da radiação  $\gamma$  são possíveis duas ondas, uma para o campo magnético e outra para o campo elétrico, logo para cada valor de  $l$  existem dois quanta de radiação com o mesmo momento angular, sendo um para a radiação elétrica e outro para a magnética, diferindo entre si apenas pela paridade. A paridade de um multipolo elétrico é a mesma que a de uma partícula material com  $l$  idênticos, ao passo que a de um multipolo magnético é exatamente o contrário. Em resumo a paridade do multipolo elétrico é igual a  $(-1)^l$  e a paridade do multipolo magnético igual a  $(-1)^{l+1}$ , em que  $+1$  significa paridade par e  $-1$  paridade ímpar.

A probabilidade de transição de um sistema de partículas partindo do estado  $\Psi_A$  para o estado  $\Psi_B$  é proporcional a  $\int \Psi_A q \Psi_B^* dr$ , em que  $\Psi_B^*$  é o complexo conjugado de  $\Psi_B$ ,  $dr$  é um elemento de volume e  $q$  é um operador dependente do tipo de transição. Para o caso do momento do dipolo elétrico  $q = \sum e_i x_i$ , cujo valor muda de sinal de acordo a mudança de sinal de  $x$  na sua reflexão, e então a probabilidade  $\int \Psi_A (\sum e_i x_i) \Psi_B^* dr$  em todo o espaço é idêntica a zero. Para o momento do quadrupolo elétrico  $q = \sum e_i x_i^2$  não existe mudança de sinal na reflexão de  $x$ . Se  $\Psi_A$  representa um estado de paridade qualquer então  $\Psi_B^*$  ou  $\Psi_B$  ter paridade contrária para existir uma probabilidade finita e a transição  $\gamma$  poder acontecer.

Na tabela 2.9 estão representadas resumidamente as regras de seleção para emissão ou absorção de fótons  $\gamma$ .

Tabela 2.9 – Resumo das regras de seleção para emissão  $\gamma$ .

<i>Classificação</i>	<i>Símbolo</i>	<i>l</i>	<i>Mudança de paridade no núcleo</i>
Dipolo Elétrico	E1	1	Sim
Dipolo Magnético	M1	1	Não
Quadrupolo Elétrico	E2	2	Não
Quadrupolo Magnético	M2	2	Sim
Octopolo Elétrico	E3	3	Sim
Octopolo Magnético	M3	3	Não
$2^l$ -polo Elétrico	$El$	$l$	Não para $l$ par Sim para $l$ ímpar
$2^l$ -polo Magnético	$Ml$	$l$	Sim para $l$ par Não para $l$ ímpar

A dinâmica dos fenômenos eletromagnéticos envolvidos nas transições  $\gamma$  deve-se à movimentação individual dos prótons sob o efeito dos momentos magnéticos de nêutrons e prótons, provavelmente também na troca de cargas entre eles, juntamente com troca de forças entre os nucleons. As probabilidades absolutas de transição  $\gamma$  previstas teoricamente são proporcionais aos momentos destes multipolos eletromagnéticos. Para Weisskopf (EVANS, p. 214) numa transição de multipolo elétrico de ordem  $2l$ , a vida média parcial  $\tau_{el} = 1/\lambda$  para a emissão de um  $\gamma$  com energia  $h\nu$  é

$$\frac{1}{\tau_{el}} = S \frac{2\pi\nu}{137} \left( \frac{R}{\lambda} \right)^{2l} \quad (2.40),$$

que se refere à transição de um próton do nível inicial  $I_1 = J_1 = l + \frac{1}{2}$  para o nível final  $I_2 = J_2 = 0 + \frac{1}{2} = \frac{1}{2}$  e representa o valor mínimo para  $\tau_{el}$ , em que  $R = R_0 A^{\frac{1}{3}}$  é o raio para um núcleo de massa  $A$ ,  $R_0$  é o raio nuclear unitário,  $\nu$  é a frequência do fóton,  $\lambda = \frac{c}{\nu}$  e  $S$  é um fator estatístico dado por  $S = \frac{2(l+1)}{l[1 \times 3 \times 5 \dots (2l+1)]^2} \left( \frac{3}{l+3} \right)^2$ .

Os valores  $1/S$  crescem aproximadamente  $10^2$  vezes para cada incremento de  $l$ , conforme ilustrado na tabela 2.10.

Tabela 2.10 – Incremento de  $1/S$  em função de  $l$ .

$l$	1	2	3	4	5
$1/S$	4	$2,1 \times 10^2$	$1,6 \times 10^4$	$1,9 \times 10^6$	$3,2 \times 10^8$

$$\text{De } \quad \tilde{\lambda} = \frac{\lambda}{2\pi} \Rightarrow \lambda = 2\pi\tilde{\lambda} = \frac{c}{\nu} = \frac{ch}{\nu h} = \frac{(h/m_0c)}{(W/m_0c^2)} = \frac{1,240 \times 10^{-13} \text{ cm}}{W(\text{emMev})}$$

e então 2.40 pode ser expressa em segundos como

$$\tau_{el} \cong \left\{ \left[ \frac{70}{W(\text{emMev})} \right]^{2l+1} \left( \frac{2}{A^{\frac{1}{3}}} \right)^{2l} \left( \frac{1,29 \times 10^{-21}}{S} \right) \right\} \therefore \tau_{el} = \frac{1}{S} \left[ \frac{137}{(W/m_0c^2)} \right]^{2l+1} \left[ \frac{r_0}{R_0 A^{\frac{1}{3}}} \right]^{2l} \left( \frac{\hbar}{m_0c^2} \right),$$

em que  $r_0 = \left( \frac{e^2}{m_0c^2} \right) = 2,82 \times 10^{-13} \text{ cm}$  é o raio clássico do elétron,  $\left( \frac{\hbar}{m_0c^2} \right) = 1,29 \times 10^{-21} \text{ s}$  e

$$\frac{r_0}{R_0} \cong 2.$$

A radiação multipolar elétrica tem origem na variação da densidade de carga nuclear  $\rho$  e a radiação multipolar magnética surge das variações periódicas na densidade de corrente, que é da ordem de  $(v/c)\rho$ , em que  $v$  é a velocidade das cargas. Portanto para uma mesma polaridade  $l$  a probabilidade de emissão (intensidade) de uma radiação magnética de ordem  $2l$  será muito menor do que a de uma radiação elétrica de mesma ordem; por exemplo, a intensidade de um dipolo magnético será  $(v/c)^2$  vezes menor que a de um dipolo elétrico.

A probabilidade de emissão dos  $\gamma$  por unidade de tempo decresce rapidamente com crescimento de  $l$ , variando aproximadamente com  $(R/\tilde{\lambda})^{2l}$ , e a radiação multipolar observada na transição de um nível nuclear inicial para outro final, equivalente a uma variação de momento angular  $I_i$  para  $I_f$ , corresponde primeiramente ao menor valor de  $l$  que seja consistente com a conservação do momento angular ( $l = |I_i - I_f| = \Delta I$ ) e também com condição para a variação da paridade, de acordo com a tabela 2.11.

Tabela 2.11 – Classificação e variação da paridade em função de  $\Delta I$  e  $l$ .

Paridade	$\Delta I =  I_i - I_f $	Mudança no núcleo		Radiação predominante	Mistura fraca de
		Spin ( $\Delta S$ )	Paridade		
Favorecida	Par (não zero)	0	não	$E\Delta I$	$M(\Delta I+1)$ ; ausente se $I_i$ ou $I_f = 0$ .
	zero	0	não	M1	E2; ausente se $I_i = I_f = 1/2$ .
	Ímpar	0	sim	$E\Delta I$	$M(\Delta I+1)$ ; ausente se $I_i$ ou $I_f = 0$ .
Não favorecida	Par (não zero)	$\pm 1$	sim	$M\Delta I$	$E(\Delta I+1)$ ; ausente se $I_i$ ou $I_f = 0$ .
	zero	$\pm 1$	sim	E1	M2; ausente se $I_i = I_f = 1/2$ .
	Ímpar	$\pm 1$	não	$M\Delta I$	$E(\Delta I+1)$ ; ausente se $I_i$ ou $I_f = 0$ .

### 2.6.3 – O decaimento radioativo por meio da Conversão Interna

Após emitir uma partícula, um núcleo que permaneceu excitado, ao invés de buscar o equilíbrio por meio de uma radiação  $\gamma$  poderá fazer uma transição para um estado estável ou

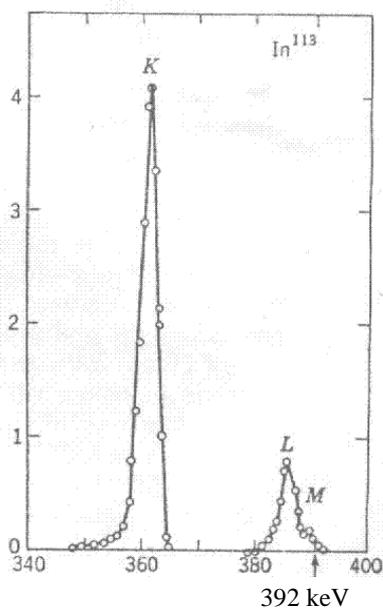


Figura 2.9 – Relação  $K/(L+M)$  para os elétrons de conversão do  $^{113}\text{In}$  (EVANS, p. 219).

de menor excitação transferindo o excesso de energia diretamente para um elétron ligado ao próprio átomo, que é ejetado com uma  $E_i = W - B_i$  energia, em que  $W$  é a energia de excitação nuclear contida no campo multipolar que resultaria na emissão  $\gamma$  e  $B_i$  é a energia de ligação do elétron que será emitido com energia  $E_i$ . Este tipo de transição ficou conhecido como Conversão Interna e a sua ocorrência concorre com o decaimento  $\gamma$ . A figura ao lado (Evans, 1979, p. 219) mostra um espectro da relação de elétrons ejetados das camadas K, L, M por meio de uma conversão interna da energia de excitação de 392 keV do  $^{113}\text{In}$ , que após ejetar os elétrons emite a energia  $B_i$  na forma de raios X ou elétrons Auger.

Inicialmente imaginava-se que o espectro dos elétrons de conversão seriam linhas características sobre um espectro contínuo  $\beta$ , tendo-se em vista que a radiação  $\gamma$  era por volta de 1922 erroneamente associada à desaceleração das partículas  $\beta$  durante sua passagem pela eletrosfera atômica e por isso imaginada ser uma radiação de frenamento (Bremstrahlung) como o espectro contínuo dos raios X. Posteriormente esta idéia foi abandonada quando se mostrou que as linhas espectrais dos elétrons de conversão também existiam em emissores  $\alpha$ , que não apresentavam o espectro contínuo  $\beta$ .

Se representarmos para uma determinada amostra a probabilidade temporal de emissão de um fóton  $\gamma$  com energia  $W = h\nu$  pela constante de decaimento  $\lambda_\gamma$  e a probabilidade temporal de emissão de um elétron de conversão pela constante de decaimento  $\lambda_e$ , então o coeficiente de conversão interna total pode ser definido como  $\alpha \equiv \lambda_e/\lambda_\gamma = N_e/N_\gamma$ , em que  $N_e$  são os elétrons de conversão e  $N_\gamma$  os fótons  $\gamma$  que foram contados no mesmo intervalo de tempo, provenientes dos núcleos que decaíram pela mesma transformação nuclear caracterizada pela energia  $W$ . Portanto a probabilidade de transição total pode ser expressa como  $\lambda = \lambda_\gamma + \lambda_e = \lambda_\gamma(1 + \alpha)$  e o número total de núcleos em transformação como  $N_\gamma + N_e$ ; da mesma maneira o coeficiente de conversão interna total, representando as conversões internas ocorridas nas diferentes camadas eletrônicas K,L,M, ... , pode ser expresso por  $\alpha = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M \dots$

Antes de 1933 o coeficiente de conversão interna total (descrito aqui como  $\alpha_{old}$ ) era definido como  $\alpha_{old} = N_e/(N_e + N_\gamma)$  e variava entre  $0 \leq \alpha_{old} \leq 1$ ; portanto apresenta  $\alpha = N_e/N_\gamma = \alpha_{old}/(1 - \alpha_{old})$  valores entre  $0 \leq \alpha \leq 1\infty$ . Estas duas diferentes definições costumam causar algumas confusões e por exemplo uma expressão do tipo “... um emissor  $\gamma$  80% convertido” não significa que  $\alpha = 0,8$  e sim que  $\alpha_{old} = 0,8$  e conseqüentemente

$$\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma} = \frac{0,8}{(1-0,8)} = \frac{0,8}{0,2} = 4.$$

Os valores teóricos dos coeficientes de conversão interna dependem dos seguintes parâmetros: da energia  $W$  da transição nuclear; do número atômico  $Z$  do núcleo em transformação; da ordem  $l$  do multipolo na transição nuclear; da paridade do multipolo,

favorecida para o elétrico ou não favorecida para o magnético; da camada atômica (K, L<sub>I</sub>, L<sub>II</sub>, ..., M<sub>I</sub>, M<sub>II</sub>, ...) na qual a conversão interna ocorre.

Devido às dificuldades de se calcular exatamente os valores para  $\alpha_K$ ,  $\alpha_L$ ,  $\alpha_M$  ..., foram propostas fórmulas aproximadas que, embora com utilidade limitada, têm servido como guias não refinados para estes coeficientes. Como exemplo pode ser citada as fórmulas com tratamento relativístico de Dancoff e Morrison (EVANS, p. 221), que propuseram uma equação para calcular a transferência da energia de transição  $W$  para um multipolo elétrico de ordem  $2l$  (em que  $l = 1, 2, 3, \dots$ ), que por sua vez a direciona para a ejeção dos elétrons da camada  $k$ , definida como

$$(\alpha_k)_{el} \cong \frac{l}{l+1} z^3 \left( \frac{1}{137} \right)^4 \left( \frac{2m_0 c^2}{W} \right)^{l+\frac{5}{2}}. \quad (2.41)$$

Para o direcionamento da energia  $W$  a partir de um multipolo magnético de ordem  $2^l$  tem-se

$$(\alpha_k)_{mag} \cong z^3 \left( \frac{1}{137} \right)^4 \left( \frac{2m_0 c^2}{W} \right)^{l+\frac{3}{2}}. \quad (2.42)$$

Nestas duas equações anteriores foram considerados  $m_0 c^2 \gg W \gg B_K$  e desprezadas a energia de ligação  $B_K$ .

Devido à maior probabilidade dos elétrons da camada K estarem mais próximos ao núcleo do que os da camada L,  $\alpha_k$  é sempre maior do que  $\alpha_L$ , cuja dependência em relação a  $l$ ,  $W$  e  $Z$  ocorre de maneira diferente quando comparada com  $\alpha_k$ ; portanto  $\alpha_k/\alpha_L = (N_K/N_\lambda)/(N_L/N_\lambda) = N_K/N_L$  (conhecida fração K/L, em que  $N_k$  e  $N_L$  são os elétrons de conversão surgidas nas camadas K e L) também torna-se dependente dos mesmos parâmetros e como  $l = |I_i - I_f| = \Delta I$  e devido à facilidade de observação experimental  $\alpha_k/\alpha_L$  de sua determinação propicia uma das melhores maneiras para a determinação da diferença paridade e de momento angular  $\Delta I$  entre dois níveis de um mesmo núcleo. Como a maioria dos detectores não possuem boa discriminação entre os elétrons de conversão das camadas L e M, na prática determina-se a fração  $K/(L+M)$ . A figura 2.10 ilustra uma série de valores experimentais da relação  $K/(L+M) = \alpha_k/\alpha_L + \alpha_M$  para transições nucleares identificadas como M4 ( $\Delta I = 4$ , Sim).

Para um mesmo conjunto de valores  $W$  e  $Z$ , observa-se que  $\alpha_k/\alpha_L$  decresce à medida que  $\Delta I$  cresce. Em relação aos multipolos elétrico e magnético, para um mesmo conjunto de valores  $W$ ,  $Z$  e  $\Delta I$ , observa-se que  $(\alpha_k/\alpha_L)_{el} < (\alpha_k/\alpha_L)_{mag}$ .

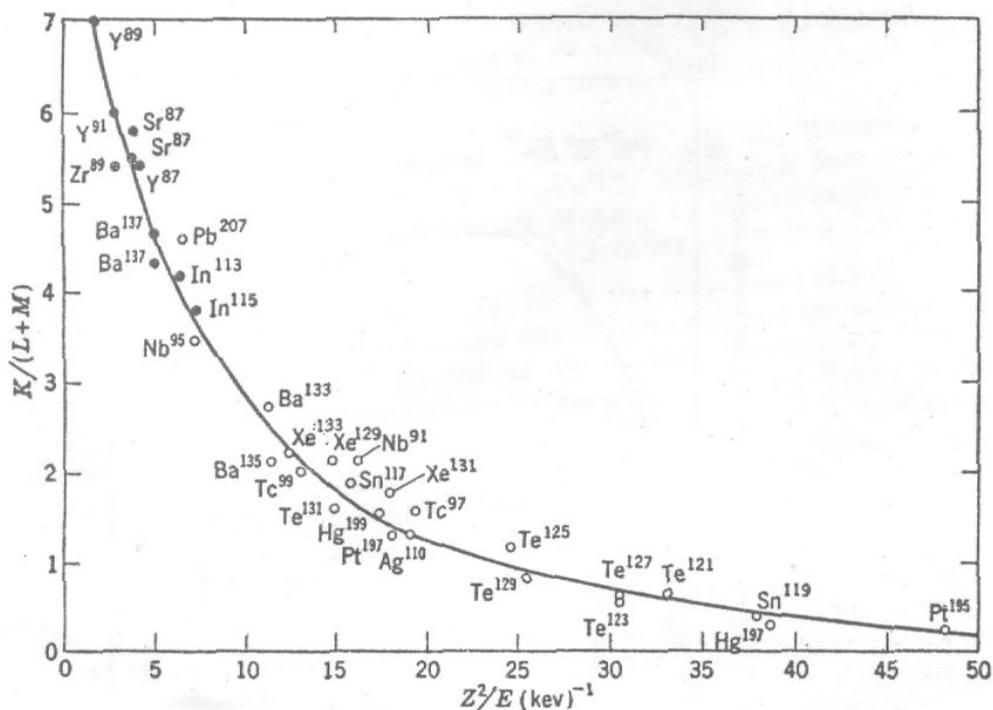


Figura 2.10 – Valores experimentais de  $K/(L+M) = \alpha_K / (\alpha_K + \alpha_M)$  obtidos em transições M4 ( $\Delta I = 4$ , Sim) com elétrons de conversão (EVANS, p. 224).

## 2.7 – Cintilação em Meio Líquido

### 2.7.1 - O processo de conversão de energia em luz

Uma solução cintiladora normalmente é composta pelos seguintes tipos de substâncias: um solvente, com a função de interagir diretamente com as partículas ou elétrons secundários produzidos pela radiação; um soluto primário, com a função de interagir com as moléculas excitadas do solvente e liberar fótons para serem detectados pelas

fotomultiplicadoras; um soluto secundário, muito usado nos primeiros sistemas de detecção, com a função de absorver os fótons emitidos pelo soluto primário e emitir outros com frequência adequada à sensibilidade das fotomultiplicadoras mais antigas; e por último a solução radioativa que se quer determinar a atividade.

As partículas carregadas e os elétrons secundários liberam energia interagindo principalmente com as moléculas do solvente, a maioria na solução cintiladora, aumentando a energia térmica das que sofreram interação. Parte da energia liberada também será consumida produzindo pares de íons, radicais livres e fragmentos moleculares, fazendo com que a eficiência luminosa da solução cintiladora dependa da maneira que os produtos criados encontrarem para se recombinar (Malonda, p. 12, 1995). A concentração destes produtos dependerá da ionização específica da radiação, sendo mais alta principalmente em seu ponto inicial de interação e depois ao redor da trajetória da partícula, ocasionando uma redução da eficiência luminosa toda vez que esta grande quantidade de íons e moléculas excitadas reagirem entre si, ao invés de reagirem com as moléculas dos cintiladores, por meio de um fenômeno denominado como extinção por ionização (Malonda, p. 20 - 27, 1995).

As sucessivas recombinações iônicas são responsáveis pela produção de cerca de 60% das moléculas excitadas no solvente (SÁNCHEZ, 1993). Estas moléculas ( $S^*$ ) encontram-se nos níveis eletrônicos  $\Pi(S_n, T_n)$  e  $\sigma(\sigma_n)$  com níveis de excitação  $n \geq 2$ .

As moléculas excitadas no estado singlete ( $S_n$ ) e no estado triplete ( $T_n$ ) são as únicas responsáveis pela emissão de fótons, porém só as que passaram para o estado singlete produzirão fótons aproveitáveis no processo de detecção. A emissão de fótons pelas moléculas no estado singlete  $S_n$  ocorre rapidamente após a excitação, produzindo fótons de fluorescência, ao passo que nas moléculas no estado triplete  $T_n$  o correspondente processo ocorrerá mais lentamente, produzindo fótons de fosforescência.

Os processos de absorção de energia ( $E$ ) pelas moléculas não excitadas do solvente ( $S_0$ ) podem produzir diretamente os seguintes produtos: moléculas no estado  $S_n$ ,  $T_n$  e  $\sigma_n$ ; íons moleculares  $X^+$  e  $X^-$ ; radicais livres  $F^+$  e  $F^-$ ; e elétrons  $e^-$ .

Em estudos quantitativos (BIRKS, 1951, 1966, 1971) foi verificado que a probabilidade de excitação das moléculas é da mesma ordem de grandeza que a probabilidade de ionização dos íons moleculares e radicais livres. Verificou-se também que a produção de moléculas excitadas no estado  $\sigma_n$  é muito mais provável que as do estado excitado  $S_n$  e  $T_n$ .

Um resumo da absorção direta de energia no solvente pode ser visto nas alternativas de interação da tabela 2.12.

Tabela 2.12 Possibilidades de absorção direta de energia no solvente.

<i>Alternativa de Interação</i>	<i>Tipo de interação</i>	<i>Produtos formados</i>	<i>Observações</i>
1	$S_0 + E$	$S_n$	
2	$S_0 + E$	$T_n$	
3	$S_0 + E$	$\sigma_n$	Muito mais provável que as alternativas 1 e 2.
4	$S_0 + E$	$X^+ + e^-$	Mesma probabilidade que as alternativas 1,2 e 3.
5	$S_0 + E$	$F^+ + F^-$	

Os elétrons gerados na quarta alternativa proporcionarão outras cinco possibilidades (SÁNCHEZ, 1993), ilustradas na tabela 2.13.

Tabela 2.13 Possibilidades de absorção de energia pela alternativa 4 da Tabela 2.12.

<i>Alternativa de Interação</i>	<i>Tipo de interação</i>	<i>Produtos formados</i>
6	$X^+ + e^-$	$S_n$
7	$X^+ + e^-$	$T_n$
8	$X^+ + e^-$	$\sigma_n$
9	$S_0 + e^-$	$X^-$
10	$F^+ + e^-$	$F$

Os íons moleculares gerados nas alternativas 4 e 9 das duas últimas tabelas também proporcionarão as cinco possibilidades ilustradas na tabela 2.14, onde o \* representa os estados excitados, produzindo dímeros [ S , S ] ou [ T , T ] (SÁNCHEZ, 1993),

Tabela 2.14 – Possibilidades de absorção de energia geradas nas alternativas 4 da tabela 2.12 e 9 da tabela 2.13.

<i>Alternativas de Interação</i>	<i>Tipo de interação</i>	<i>Produtos formados</i>
11	$X(1)^+ + X(2)^-$	$[S(1)S(2)]^*$
12	$X(1)^+ + X(2)^-$	$[T(1)T(2)]^*$
13	$X^+ + S_0$	$[S(1)S(2)]^+$
14	$[S(1)S(2)]^+ + e^-$	$[S(1)S(2)]^*$
15	$[S(1)S(2)]^+ + e^-$	$[T(1)T(2)]^*$

As moléculas e dímeros em estados excitados produzirão dois tipos de cintilação; uma rápida em torno de  $10^{-9}$  segundos, fluorescência, causada pela desexcitação dos estados moleculares singletes e uma cintilação lenta, fosforescência, com vida-média em torno de um segundo, proveniente da desexcitação dos estados moleculares tripletes. Somente 10% da energia cinética dos elétrons que interagem no coquetel cintilador contribuem para a formação de moléculas ou dímeros no estado singlete, mesmo assim a fluorescência constitui-se no mecanismo de cintilação mais importante.

As interações que produzem moléculas excitadas no estado  $\sigma_n$ , alternativas 3 e 8, e as que produzem radicais livres, alternativas 5 e 10, dissipam energia somente através da produção de calor, não produzindo portanto nenhum tipo de cintilação.

### 2.7.3 – A migração de energia no solvente

A energia absorvida no interior do solvente (SÁNCHEZ, 1993) se desloca, pelo processo de excitação de molécula a molécula, até que é cedida para o soluto, a uma molécula da substância cintiladora ou a uma molécula de um agente extintor. Este processo de transferência de energia solvente - solvente é muito rápido, da ordem de

nanosegundos, e é explicado pela teoria de Birks (BIRKS, 1951, 1966, 1971) e de Voltz (VOLTZ et al., 1963).

Na teoria de Birks a transferência de energia se deve a união e dissociação de duas moléculas pela formação de excímeros, processo em que uma molécula excitada do solvente se une a uma outra não excitada e ao romper essa união transfere sua energia para a que não estava excitada anteriormente. Este processo ocorre a uma grande distância em relação ao tamanho da molécula e pode ser representado como



em que:  $S_I(1)$  é a molécula 1 excitada,  $S_0(2)$  é a molécula 2 não excitada,  $S_0(1)$  é a molécula 1 não excitada e  $S_I(2)$  é a molécula 2 excitada.

Na teoria de Voltz a transferência de energia se dá através de um processo não radioativo de transferências de excitação entre moléculas vizinhas, ilustradas nas alternativas da tabela 2.15.

Tabela 2.15 – Possibilidades de transferência de excitação não radioativa entre moléculas vizinhas.

<i>Alternativa de Interação</i>	<i>Tipo de transferência</i>	<i>Produtos formados</i>
1	$S_n(1) + S_0(2)$	$S_0(1) + S_n(2)$
2	$S_I(1) + S_0(2)$	$S_0(1) + S_I(2)$
3	$T_I(1) + T_I(2)$	$S_I(1) + S_0(2)$ $S_0(1) + S_I(2)$

em que:  $S_n(1)$  é a molécula 1 no estado singlete com nível de excitação  $n$  e  $T_I(1)$  é a molécula 1 no estado triplete com nível de excitação 1.

#### 2.7.4 – A migração de energia do solvente para o soluto

A maioria das substâncias utilizadas como solventes emitem baixa quantidade de fótons, por isso torna-se necessário adicionar outras substâncias como soluto para que a

conversão de excitação em emissão de fótons seja eficiente. Normalmente adiciona-se dois solutos: um com a finalidade de absorver excitação e produzir fótons, o soluto primário; e outro com a finalidade de absorver os fótons produzidos pelo soluto primário e emitir outros de frequência equivalente à faixa sensível das substâncias utilizadas nos fotocátodos, o soluto secundário. Atualmente emprega-se também o soluto secundário para reduzir certas extinções que aparecem no sistema cintilador – amostra, provocadas pela existência de coloração.

Entre as substâncias mais utilizadas como soluto primário encontra-se o butil-PBD e o PPO (BARQUERO, 1993) e, como soluto secundário, o DPH e o POPOP.

As principais características dos solventes estão ilustradas na tabela 2.16.

Tabela 2.16 – Principais características dos solventes.

Apresentam baixa probabilidade de emissão de fótons.
A distribuição espectral dos fótons não se adapta à sensibilidade das fotomultiplicadoras.
As vidas-médias dos fótons são longas, $\cong 30$ ns, aumentando a probabilidade de extinção.
Por serem muito concentrados, os fótons apresentam alta probabilidade de serem reabsorvidos.

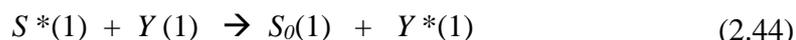
As principais características dos solutos estão ilustradas na tabela 2.17.

Tabela 2.17 – Principais características dos solutos.

Apresentam alta probabilidade de fluorescência, $\cong 90\%$ .
A distribuição espectral dos fótons deve se ajustar à máxima sensibilidade dos fotocátodos.
As vidas-médias dos fótons são muito curtas, $\cong 1$ a 2 ns.
Por serem pouco concentrados, os fótons possuem baixa probabilidade de serem reabsorvidos.

### 2.7.5 – A transferência de energia do solvente para o soluto primário

Nas moléculas em estado singlete a transferência de energia, das moléculas excitadas do solvente para as do soluto primário, é um processo não radiativo de ressonância dipolar que se processa a partir do nível de excitação mais baixo, ocorrendo com distância intermolecular de até 60 Å e dentro de  $10^{-11}$  segundos. Pode ser representado pelo esquema:



em que: \* significa o estado excitado,  $S(1)$  são as moléculas do solvente e  $Y(1)$  são as moléculas do soluto primário.

Após receberem excitação do solvente, as moléculas do soluto primário sofrem uma desexcitação vibracional que as deixa sem energia suficiente para excitar outras moléculas do solvente, fazendo com que a excitação remanescente fique retida até que a molécula do soluto encontre outra forma de desexcitação. Portanto, ao contrário do processo bidirecional existente na transferência solvente – solvente, a transferência de energia solvente – soluto primário é irreversível.

Em soluções cintiladoras com concentrações muito baixas,  $\cong 10^{-2}$  molar, cada molécula do solvente transfere sua excitação para uma molécula do soluto e se a concentração diminuir, a eficiência na emissão de fótons também diminuirá.

### **2.7.6 – A transferência de energia do solvente para o soluto secundário**

A transferência de energia, das moléculas excitadas do solvente para as do soluto secundário, pode se processar de maneira análoga à do soluto primário, porém como a concentração do soluto secundário na solução cintiladora é muito menor,  $\cong 0,5 \text{ g/dm}^3$ , que a concentração do soluto primário,  $\cong 5 \text{ g/dm}^3$ , este tipo de transferência de energia é muito pouco provável. Também é possível existir a transferência de energia não radioativa, dos estados excitados das moléculas do cintilador primário para as do cintilador secundário, porém devido à baixa concentração do cintilador secundário, este processo não é competitivo com o processo luminoso.

A principal forma de transferência de energia para as moléculas do soluto secundário ocorre através da absorção dos fótons de fluorescência emitidos pelo soluto primário, conforme o esquema abaixo, em que: \* indica um estado excitado;  $Y$  é a molécula do

soluto primário;  $h\nu$  é o fóton de fluorescência emitido; e  $Z$  é a molécula do soluto secundário.



Da mesma forma que no caso da transferência solvente – soluto primário, este processo de transferência de energia também é irreversível. Após absorver os fótons emitidos pelas moléculas do cintilador primário, as moléculas do cintilador secundário se desexcitam emitindo fótons de fluorescência, originários dos estados singletes, e de fosforescência, originários dos estados tripletes.

A maioria das desexcitações entre dois estados vibracionais possíveis da molécula, ocorrem desde o primeiro estado singlete excitado até o estado eletrônico singlete fundamental. O esquema a seguir simboliza esta transferência de energia, em que o primeiro dígito do índice corresponde ao nível eletrônico e o segundo ao nível vibracional.



As transferências de energia entre dois sub-níveis vibracionais do mesmo nível eletrônico não são radioativas; o mesmo ocorre com as transferências entre estados singletes e tripletes do mesmo nível energético.

## 2.8 – O Método de Coincidência

Desde 1930, quando se estudava com detectores Geiger-Müller o efeito Compton produzido por raios cósmicos, que a técnica de contagem com sinais eletrônicos em coincidência vem sendo utilizada. Sua aplicação em pesquisas com radionuclídeos ( BOTHE et al., 1935) iniciou-se em 1935 mas só em 1940 começou a ser sistematizada como método consideravelmente preciso e capaz de determinar absolutamente, em observações adequadas, a atividade de fontes radioativas e a eficiência dos detectores, sem a necessidade de se referenciar a um padrão (DUNWORTH, 1940 ).

No Método de Coincidência para cada tipo de emissão radioativa de interesse são utilizados detectores adequados, cujos sinais de saída são processados e registrados por vias eletrônicas independentes, sendo cada uma composta por pré-amplificador, amplificador, analisador de altura de pulso, contador digital e/ou analisador multicanal. Também são registrados os eventos de vias diferentes que coincidam dentro de um determinado intervalo tempo, determinado pelas características de resolução dos detectores e das vias eletrônicas consideradas. Por exemplo, para um radionuclídeo que emite uma partícula  $\beta$  seguida de um fóton  $\gamma$  serão necessárias três vias de instrumentação:

- a primeira para detectar as partículas  $\beta$ , registrando  $N_\beta$  contagens por minuto;
- a segunda para detectar os fótons, registrando  $N_\gamma$  contagens por minuto;
- a terceira para selecionar as contagens da via  $\beta$  e as da via  $\gamma$  que coincidiram dentro do tempo de resolução selecionado, registrando  $N_C$  contagens por minuto.

Nesta condição, sabendo-se que um detector ideal com eficiência  $\varepsilon$  registra  $N_0\varepsilon$  contagens por segundo de uma amostra com atividade  $A = N_0$ , são válidas as equações (Baerg, 1966)

$$N_\beta = N_0 \varepsilon_\beta \quad (2.48)$$

em que  $\varepsilon_\beta$  é a eficiência de contagem do detector  $\beta$ ,

$$N_\gamma = N_0 \varepsilon_\gamma \quad (2.49)$$

em que  $\varepsilon_\gamma$  é a eficiência de contagem do detector  $\gamma$  e

$$N_c = N_0 \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma. \quad (2.50)$$

Neste caso ideal, em que os detectores só captam as radiações de suas respectivas vias e nenhuma outra, a atividade da amostra radioativa será calculada pela equação

$$N_0 = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad (2.51)$$

Como na prática os detectores não são ideais, torna-se necessário acrescentar fatores de correção (KAWADA, 1972) nas equações 2.48, 2.49 e 2.50; isto ocorre porque após emitir uma partícula o radionuclídeo poderá transferir sua excitação residual para as camadas mais externas do átomo e emitir um elétron de conversão ao invés de emitir o fóton. Por outro lado, como o detector  $\beta$  também apresenta sensibilidade para fótons, poderá ocorrer o registro de um fóton  $\gamma$  como sendo uma partícula  $\beta$ . Após inserir as devidas correções e considerarmos um esquema complexo com vários ramos de decaimento  $r$  ( $r = 1, 2, 3 \dots n$ ), as equações então poderão ser expressas (BAERG, 1966, GRIGORESCU, 1973) pelas equações 2.52, 2.53, 2.57 e 2.58.

$$N_\beta = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left\{ \varepsilon_{\beta_r} + [(1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r] \right\} \quad (2.52)$$

$$N_\gamma = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma_r}}{1 + \alpha_r} \quad (2.53)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left\{ [(1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{c_r}] + \frac{\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon_{\gamma_r}}{1 + \alpha_r} \right\} \quad (2.54)$$

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left\{ \varepsilon_{\beta_r} + [(1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r] \right\} \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma_r}}{1 + \alpha_r}}{\sum_{r=1}^n a_r \left\{ [(1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{c_r}] + \frac{\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon_{\gamma_r}}{1 + \alpha_r} \right\}} \quad (2.55)$$

em que a equação 2.55 calcula o valor da atividade aparente da amostra e a identificação dos componentes das equações 2.52 a 2.55 está descrita na tabela 3.1.

Tabela 2.18 – identificação dos componentes das equações 2.52, 2.53, 2.54 e 2.55.

$N_0$	é a Atividade da amostra radioativa.
$N_\beta, N_\gamma$ e $N_c$	são as taxas de contagem das vias $\beta$ , $\gamma$ e de coincidência.
$\epsilon_{\beta r}$	é a eficiência de detecção de partículas na via $\beta$ , no ramo $\beta$ - $\gamma$ considerado.
$\epsilon_{\gamma r}$	é a eficiência para detecção de fótons na via $\gamma$ , no ramo $\beta$ - $\gamma$ considerado.
$\epsilon_{\beta\gamma}$	é a eficiência para detecção de fótons na via $\beta$ .
$\epsilon_{ec}$	é a eficiência para a detecção de elétrons de conversão na via $\beta$ , emitidos em substituição aos fótons $\gamma$ .
$\epsilon_{cr}$	é a eficiência para a contagem de coincidências acidentais, de fótons do decaimento detectados na via $\gamma$ com fótons espalhados ou de bremsstrahlung detectados na via $\beta$ .
$a_r$	é a intensidade das partículas $\beta$ , no ramo $\beta$ - $\gamma$ considerado.
$\alpha_r$	é o coeficiente para emissão dos elétrons de conversão interna, no ramo $\beta$ - $\gamma$ considerado.
$\alpha$	é o coeficiente de conversão interna total.

Normalmente a maioria dos termos usados à direita nas equações 2.52 a 2.54 não são conhecidos com suficiente precisão e por isso fica difícil calcular o valor da atividade para um radionuclídeo com esquema de decaimento complexo diretamente da equação 2.55, exceto quando se tratar de um único decaimento  $\beta$ - $\gamma$ , em que poderá ser utilizada a equação 2.51 como boa aproximação.

Considerando que todos os ramos  $\beta$  sofrem a influência das mesmas variáveis físicas responsáveis por perdas de eficiência de contagem, teoricamente é possível dispor de um conjunto de equações definindo condições experimentais de parâmetros específicos que ao se aproximarem precisamente de um determinado valor permitirá então a determinação direta do valor da atividade  $N_0$  também para os radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos. Desta maneira, a eficiência na determinação de cada parâmetro específico, representada genericamente por  $\epsilon_i$ , pode ser funcionalmente relacionada à eficiência  $\epsilon_{\beta s}$ , de um ramo de decaimento  $\beta$  arbitrariamente selecionado, por meio de uma função  $g_i$  definida unicamente com valores do parâmetro específico considerado. Por exemplo para as eficiências especificadas pelas equações de  $\epsilon_{\beta r}$ ,  $\epsilon_{ec}$ ,  $\epsilon_{\beta\gamma}$  e  $\epsilon_{cr}$  serão válidas as condições abaixo, quando o valor de  $\epsilon_{\beta s}$  tender para a unidade.

$$\left. \begin{aligned}
\varepsilon_{\beta_r} &= 1 - g_r(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \rightarrow 1 \\
\varepsilon_{ec} &= 1 - g_{ec}(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \rightarrow 1 \\
\varepsilon_{\beta_\gamma} &= \varepsilon_{\beta_\gamma}^0 - g_{\beta_\gamma}(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \rightarrow \varepsilon_{\beta_\gamma}^0 \\
\varepsilon_{cr} &= \varepsilon_{cr}^0 - g_{cr}(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \rightarrow \varepsilon_{cr}^0
\end{aligned} \right\} \text{quando } \varepsilon_{\beta_s} \rightarrow 1 \quad (2.56)$$

A definição do formato de  $g_i$  como função de um único parâmetro de  $\varepsilon_{\beta_s}$  tem origem na equação que define a probabilidade de perda de contagem no ramo  $\beta_s$ , selecionado arbitrariamente, que é definida pela equação  $(1 - \varepsilon_{\beta_s}) = \int_0^\infty \phi(x, E) P_s(E) dE = f_s$ , em que  $\phi(x, E)$  é a probabilidade de que a partícula  $\beta_s$  de energia  $E$  não seja detectada e  $P_s(E)$  é a probabilidade de que a partícula  $\beta$  de energia  $E$  seja emitida por meio do ramo  $s$ .

De forma similar na equação de  $\varepsilon_{\beta_r}$  descrita na condição 1 do grupo de equações 3.9, a função  $g_r$  pode ser definida como  $g_r = \frac{1 - \varepsilon_{\beta_r}}{1 - \varepsilon_{\beta_s}} = \frac{f_r(x)}{f_s(x)} = g_r(x)$ , que implicitamente define  $x$  como função de  $(1 - \varepsilon_{\beta_s})$  ou  $x = f^{-1}(1 - \varepsilon_{\beta_s})$ , e portanto  $g_r = g_r(1 - \varepsilon_{\beta_s})$  e genericamente  $g_i = g_i(1 - \varepsilon_{\beta_s})$ .

Como  $(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \cong \left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma}\right)$  então as funções  $g_i$  podem ser consideradas como funções de  $x$ ,  $\varepsilon_{\beta_s}$  ou de  $(N_c / N_\gamma)$ , porém a equação de  $f_s$  foi definida como sendo de um único parâmetro em  $\varepsilon_{\beta_s}$ . Na realidade por existirem mais variáveis envolvidas  $\phi = \phi(x, \dots, x_n, E)$  e então  $(1 - \varepsilon_{\beta_s}) = f_s(x, \dots, x_n)$  e  $g_r = g_r(x, \dots, x_n)$ .

Considerando no grupo de equações 2.56 apenas a que define a eficiência  $\varepsilon_{\beta_r}$ , pode se reescrever a equação 2.52 para a forma da equação 2.57.

$$N_\beta = N_0 \left[ 1 - \left( 1 - \frac{N_c}{N_\gamma} \right) \right] G \quad (2.57)$$

Em que  $N_\beta \rightarrow N_0$  quando  $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$  e  $G$  é definida pela equação 2.58.

$$G = \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[ 1 - \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right]_r g_r}{\sum_{r=1}^n a_r \left[ \left( \frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} \right) - \varepsilon_c \right]} \sum_{r=1}^n a_r \left( \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \quad (2.58)$$

Embora o cálculo da equação 2.58 seja trabalhoso, sua complexidade permite alternativas de escolhas nas técnicas experimentais, como por exemplo considerar o valor de  $G$  constante e fazer com que  $\epsilon_{\beta r}$  seja linearmente relacionada com  $g_r$ , permitindo que o valor de  $N_0$  seja obtido por extrapolação linear dos dados experimentais das eficiências específicas. Esta técnica ficou conhecida como método de extrapolação da curva de eficiência experimental (BAERG, 1973, p. 143-150).

Aplicando as três últimas condições da equação 3.9 às equações 3.5 a 3.8, da mesma forma que foi adotada para a eficiência  $\epsilon_{\beta r}$ , depreende-se que  $N_\beta = F(N_C/N_\gamma)$  e que

$$N_\beta \rightarrow [F(1) = N_0] \text{ quando } (N_C/N_\gamma) \rightarrow 1,$$

em que  $F$  é uma função geral não especificada, que pode ser obtida na prática como um ajuste polinomial só com diferentes valores experimentais de  $(N_C/N_\gamma)$ .

Se no conjunto das equações 2.56 a ineficiência  $(1 - \epsilon_{\beta s})$  do ramo  $\beta$  selecionado arbitrariamente for substituída por  $(1 - \epsilon_{\beta s})/\epsilon_{\beta s}$ , o conjunto de equações definindo as condições experimentais dos parâmetros específicos passa a ser descrito conforme o conjunto de equações 2.59 e a equação 2.57 toma a forma da equação 2.60.

$$\left. \begin{array}{l} \epsilon_{\beta r} = 1 - g_r [(1 - \epsilon_{\beta s}) / \epsilon_{\beta s}] \rightarrow 1 \\ \epsilon_{ec} = 1 - g_{ec} [(1 - \epsilon_{\beta s}) / \epsilon_{\beta s}] \rightarrow 1 \\ \epsilon_{\beta \gamma} = \epsilon_{\beta \gamma}^0 - g_{\beta \gamma} [(1 - \epsilon_{\beta s}) / \epsilon_{\beta s}] \rightarrow \epsilon_{\beta \gamma}^0 \\ \epsilon_{cr} = \epsilon_{cr}^0 - g_{cr} [(1 - \epsilon_{\beta s}) / \epsilon_{\beta s}] \rightarrow \epsilon_{cr}^0 \end{array} \right\} \text{ quando } \epsilon_{\beta s} \rightarrow 1 \quad (2.59)$$

$$N_\beta = N_0 \left[ 1 - \frac{(1 - N_c/N_\gamma)}{(N_c/N_\gamma)} \right] G \quad (2.60)$$

O uso da função  $g_r$  implica em considerar  $\epsilon_{\beta r} = 1$  e portanto se a medição dos fótons for sempre realizada dentro da janela do fotopico selecionado, a possibilidade de detectar fótons espalhados ou de bremsstrahlung nas vias  $\beta$  e  $\gamma$  fica praticamente anulada e com

isso a contagem de coincidências acidentais também se anula, podendo então ser considerado  $\varepsilon_{cr} = 0$ ; com isso a atividade aparente pode ser escrita na forma da equação 2.61 (CAMPION, 1959, PÉROLAT, 1973), em que  $\varepsilon_{\beta} = \frac{N}{N_c}$  e  $k = \frac{\alpha\varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta}\gamma}{1 + \alpha}$ .

$$\boxed{\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left[ 1 + \frac{(1 - \varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}} \right] k} \quad (2.61)$$

A obtenção dos valores experimentais para realizar o ajuste polinomial é feita variando-se a eficiência de detecção do sistema entre uma medição e outra, podendo ser realizada pelo menos de três maneiras: por discriminação eletrônica na altura dos pulsos produzidos na detecção das partículas; por afastamento dos detectores, no caso de uso da técnica de coincidência  $\gamma$ -X; e por intervenção direta sobre a superfície da amostra, como a colocação de camadas de absorvedores para reduzir a energia das partículas que atingirão o detector. No presente trabalho foi introduzida mais uma forma de variar a eficiência de detecção das partículas, realizada por meio do aumento da distância entre as duas fotomultiplicadoras que foram montadas no interior de uma câmara escura construída especialmente para detecção com cintiladores líquidos (ver item 3.3).

Ao longo do tempo várias aplicações do método de coincidência surgiram e com elas novos desenvolvimentos foram sendo introduzidos. Dentre as importantes aplicações pode-se destacar: o uso da técnica de coincidência para determinar a atividade de radioisótopos que emitem partículas  $\beta$  seguida de radiação  $\gamma$  (CAMPION, 1959); a utilização de traçadores radioativos para eliminar erros com a auto-absorção em sistemas de detecção  $4\pi\beta\gamma$  (CAMPION et al, 1960); o uso de análise variacional aplicada às vias de contagem eletrônicas, introduzindo correções para o tempo morto e coincidências acidentais (COX & ISHAM, 1977) com a conhecida equação de Cox-Isham; a simplificação da equação de Cox-Isham adaptando-a para a forma analítica da equação 2.62 e introduzindo nesta as correções para o esquema e decaimento radioativos (SMITH, 1978), conforme expressa pela equação 2.63.

$$\boxed{N_0_{Cox-Isham/Smith} = \frac{N_{\beta} N_{\gamma} \left[ \rho_1 e^{(\rho_1 \tau_{\beta})} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau_r - \delta)} - \rho_2 e^{(\rho_2 \tau_r)} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau_r + \delta)} + \frac{N_c''}{R_{\beta} R_{\gamma}} (e^{\rho_1 \tau_{\beta}} - e^{\rho_2 \tau_r}) \right]}{N_c'' (\rho_1 e^{\rho_1 \tau_{\beta}} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau_r})}} \quad (2.62)$$

$$N_{0\text{Smith}} = N_{0\text{Cox-Isham/Smith}} \left( \frac{\Lambda f_{\lambda}}{m(1+k_e)} \right) \quad (2.63)$$

A identificação dos componentes da equação 2.62 está descrita na tabela 2.19. Os da equação 2.63 estão identificadas na tabela 2.20 e complementados por alguns componentes descritos na tabela 2.20.

Tabela 2.19 – Identificação dos componentes da equação 2.62.

$N_0$	é o valor da atividade da amostra.
$\tau_{\beta}$ e $\tau_{\gamma}$	são o tempo morto das vias $\beta$ e $\gamma$ .
$\tau$	é o tempo de resolução da unidade de coincidência.
$\delta$	é o intervalo de tempo adicionado na via $\gamma$ para que seus pulsos cheguem na unidade de coincidência juntos com os da via $\beta$ .
$B_{\beta}, B_{\gamma}$ e $B_c$	são as taxas de contagem produzidas pela radiação de fundo nas vias $\beta$ , $\gamma$ e de coincidência.
$N'_{\beta}, N'_{\gamma}, N'_c$	são as taxas de contagens das vias $\beta$ , $\gamma$ e de coincidência, subtraídas das respectivas taxas de contagens $B_{\beta}$ , $B_{\gamma}$ e $B_c$ .
$R_{N_c} = 2 \tau_{\gamma} N'_{\beta} N'_{\gamma}$	é a taxa de contagem das coincidências acidentais entre as vias $\beta$ e $\gamma$
$N''_c = N'_c - R_{N_c}$	é a taxa de contagem líquida da via de coincidência corrigida para as coincidências acidentais.
$L_{\beta} = \tau_{\beta} N'_{\beta}$	é a perda de contagem da via $\beta$ devida ao tempo morto.
$L_{\gamma} = \tau_{\gamma} N'_{\gamma}$	é a perda de contagem da via $\gamma$ devida ao tempo morto.
$R_{\beta} = 1 - L_{\beta}$	é a diferença na taxa de contagem da via $\beta$ devida ao tempo morto.
$R_{\gamma} = 1 - L_{\gamma}$	é a diferença na taxa de contagem da via $\gamma$ devida ao tempo morto.
$\rho_1 = \frac{N'_{\beta}}{1 - \tau_{\beta} N'_{\beta}}$	é a taxa de contagem da via $\beta$ corrigida para o tempo morto.
$\rho_2 = \frac{N'_{\gamma}}{1 - \tau_{\gamma} N'_{\gamma}}$	é a taxa de contagem da via $\gamma$ corrigida para o tempo morto.

Tabela 2.20 – Identificação dos componentes principais da equação 2.63.

$m, T_{1/2}$ e $\Delta t$	são respectivamente a massa, o tempo de meia-vida e o intervalo de tempo decorrido entre a data da medição da amostra do radionuclídeo e a data de referência.
$\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}$	é a constante de decaimento do radionuclídeo.

$\Lambda = e^{-\lambda \Delta t}$	é a correção para o decaimento radioativo.
$f_\lambda = \frac{\lambda \Delta t_c}{1 - e^{-\lambda \Delta t_c}}$	é a correção para o decaimento durante as medições.
$\varepsilon_\beta = \frac{N_\beta}{N_o (1 - \tau_\beta N_\beta)}$	é a eficiência $\beta$ calculada em função de $N_o$ , do tempo morto e das medições $\beta$ .
$N_\gamma^* = \rho_2 = \frac{N'_\gamma}{1 - \tau_\gamma N'_\gamma}$	é a taxa de contagem da via $\gamma$ corrigida para o tempo morto.
$N_c^*$	é a taxa de contagem da via de coincidência corrigida para o tempo morto e calculada pela equação 3.17.
$\varepsilon_\beta = \frac{N_c^*}{N_\gamma^*}$	é a eficiência $\beta$ calculada iterativamente em função de $N_c^*$ e $N_\gamma^*$ , quando se calcula $N_o$ pelo técnica de extrapolação do parâmetro de eficiência $\beta$ .
$\varepsilon_\gamma = \frac{N_\gamma}{N_o (1 - \tau_\gamma N_\gamma)}$	é a eficiência $\gamma$ calculada em função de $N_o$ , do tempo morto e das medições $\gamma$ .
$\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}$	é o fator de ineficiência $\beta$ referente ao valor de $\varepsilon_\beta$ considerado, para usar com a técnica de extrapolação.
$C$	é a constante que depende do esquema de decaimento e geometria dos detectores, obtida experimentalmente pelo valor do coeficiente angular da reta obtida na extrapolação do parâmetro de eficiência $\beta$ .
$K_e = C \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}$	é a correção para o esquema de decaimento do radionuclídeo.

$$N_c^* = \frac{N'_c (2 - L_\beta - L_\gamma)}{[2 - L_\beta - L_\gamma + 2\tau'_c N'_c - 2(\tau_r N'_\beta + \tau_r N'_\gamma)](1 - L_\beta)(1 - N'_\gamma)} - B_c \quad (2.64)$$

A técnica de medição em coincidência é uma das principais ferramentas na metrologia de radioisótopos e especialmente no IRD, através do SEMRA, Serviço de Metrologia de Radionuclídeos, vem sendo utilizada por mais de 35 anos. Durante este período o uso desta técnica vem passando por diversas fases nas rotinas operacionais do SEMRA/IRD, que são:

- a implantação em 1977 de um sistema de coincidência clássico do tipo  $4\pi\beta$ - $\gamma$ , usando um detector de Iodeto de Sódio e um contador proporcional  $4\pi$  do tipo Pill-Box de fluxo gasoso normal;
- a introdução do uso da técnica de traçadores radioativos, usando o sistema  $4\pi\beta$ - $\gamma$  (IWAHARA, 1979);

- a implantação de um sistema de coincidência  $4\pi\beta\gamma$  com detector proporcional  $4\pi$  com fluxo gasoso pressurizado, em 1985;
- a implantação de um sistema de anti-coincidência, trabalhando com uma célula para detecção com cintilador líquido na via  $\beta$  e um detector de Iodeto de Sódio na via  $\gamma$ , usando a técnica de cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível (DA SILVA, 2008);
- a introdução de um sistema de coincidência fóton-fóton, trabalhando com um detector de Iodeto de sódio e um de Germânio com 20% de eficiência relativa, implantado por meio da execução de parte do objetivo do presente trabalho.

## **2.9 – Detecção com Cintiladores Líquidos**

A detecção com Cintiladores Líquidos é considerada na atualidade como a mais sensível técnica de detecção e quantificação da radioatividade, sendo largamente utilizada em qualquer tipo de emissão nuclear. É uma técnica que faz uso da emissão de fótons de fluorescência produzidos por soluções orgânicas específicas, conhecidas como Cintiladores Líquidos, que ao serem misturados à solução contendo a amostra radioativa que se deseja determinar a atividade se transformará numa outra solução denominada Coquetel Cintilador, cujas moléculas interagirão diretamente com a radiação proveniente da amostra, sem perder energia por absorção em janelas e camadas de ar entre a radiação e o detector. As moléculas do Coquetel Cintilador que foram excitadas pela emissão radioativa dissiparão a energia absorvida em uma série colisões intramoleculares até transferir a excitação remanescente para as moléculas do Cintilador Líquido, que emitirão os fótons de fluorescência a serem detectados.

### **2.9.1 – O processo quantitativo de detecção com cintiladores líquidos**

O processo quantitativo de detecção com cintiladores líquidos pode ser sintetizado nas fases indicadas na tabela 2.21 (MALONDA, 1993, p. 7).

Tabela 2.21 – Fases do processo quantitativo de detecção com cintilação líquida.

<i>Fase</i>	<i>Eventos</i>	<i>Fenômeno produzido</i>	<i>Observações</i>
1	Uma partícula de energia $E$ interage com as moléculas do solvente	Serão excitadas $A$ moléculas do solvente, onde : $A = Q(E) s E$	$E$ = energia da partícula; $Q(E)$ = fator de extinção por ionização; $s$ = fator relativo a natureza do solvente e da substância extintora, caso exista.
2	Uma fração $t$ das $A$ moléculas excitadas transfere energia para as moléculas do soluto, com uma vida média $\tau$ .	Serão produzidas $B$ moléculas excitadas no soluto, onde : $B = t A$ ou $B = Q(E) s t E$	$Q(E) s E$ = quantidade de moléculas excitadas do solvente; $t$ = eficiência quântica de transferência entre o solvente e o soluto, que depende somente da concentração molar do soluto e das características do solvente.
3	Uma fração $q$ das $B$ moléculas excitadas emitirá fótons de fluorescência	Serão emitidos $L$ fótons de fluorescência, onde : $L = q B$ ou $L = Q(E) s t q E$ .	$Q(E) s t E$ = quantidade de moléculas excitadas no soluto
4	Devido a geometria e característica ótica do sistema de detecção, somente uma fração $c$ dos $L$ fótons emitidos pelas moléculas do soluto chegarão ao fotocátodo	Serão absorvidos no fotocátodo $f$ dos $L$ fótons emitidos, onde : $f = c L$ ou $f = Q(E) s t q c E$	$Q(E) s t q E$ = quantidade de fótons de fluorescência emitidos
5	Uma fração $k$ dos $f$ fótons que chegam ao fotocátodo consegue interagir e liberar fotoelétrons.	Serão produzidos $m$ fotoelétrons, onde : $m = p k f$ ou $m = Q(E) s t q c p k E$	$p k$ = valor médio da eficiência quântica do fotocátodo no espectro de fluorescência do soluto primário; $k$ = valor de eficiência quântica da resposta máxima do fotocátodo; $p$ = fator de acoplamento espectral entre o espectro de fluorescência do soluto e a resposta do fotocátodo.
6	Os $m$ fotoelétrons serão acelerados pelo campo elétrico existente entre os vários dinodos da $FMT$ .	Serão produzidos $T$ elétrons no anodo da $FMT$ , onde : $T = M m$ .	$M$ = fator de multiplicação total da $FMT$ .

Portanto a relação completa entre a amplitude de pulso no anodo da  $FMT$  e a energia da partícula que interagiu no cintilador poderá ser expressa por

$$T = Q(E) s t q c p k M E \quad (2.65)$$

Em que o significado de cada componente desta equação estão indicados na tabela 2.22.

Tabela 2.22 – Componentes da expressão que calcula a amplitude do pulso de tensão produzido em sistema de detecção com cintilação líquida.

$T$	amplitude do pulso eletrônico produzido na saída da <i>FMT</i>
$Q(E)$	fator de extinção por ionização
$s$	fator relativo a natureza do solvente e, caso exista, da substância extintora
$t$	eficiência quântica de transferência entre o solvente e o soluto, que depende das características do solvente e somente da concentração molar do soluto. É a fração das moléculas do solvente que transferirá energia às moléculas do soluto
$q$	fração das moléculas do soluto que emitirá fótons de fluorescência
$c$	fração de fótons emitidos pelas moléculas do soluto, que atingem o fotocátodo da <i>FMT</i>
$p$	fator de acoplamento espectral entre o espectro de fluorescência do soluto e a resposta do fotocátodo
$k$	fração dos fótons de fluorescência que produzirá fotoelétrons
$m$	quantidade de fotoelétrons produzidos no fotocátodo
$M$	fator de multiplicação total da <i>FMT</i>
$E$	energia da partícula

### 2.9.2 – Modelo do Parâmetro livre baseado no Corte Energético

Este modelo baseia-se na necessidade de um pulso apresentar um valor mínimo de amplitude  $T_0$  para que possa ser detectado no sistema de medida (MALONDA, 1993, p. 3). A esta amplitude mínima corresponderá um limiar de energia  $E_L$ , situado entre zero até um valor máximo de energia  $E_m$ , que corresponde ao valor do parâmetro livre ou figura de mérito  $\mu$  do sistema. Ou seja,  $\mu = E_L$ .

Um sistema de contagem que possua apenas uma fotomultiplicadora e produza um espectro teórico de energia, no intervalo  $E_L \leq E \leq E_m$ , cuja área esteja normalizada a uma unidade, apresentará uma eficiência de contagem equivalente ao valor numérico da

respectiva área. Se este sistema possuir duas fotomultiplicadoras operando em coincidência, apresentará então uma eficiência de contagem equivalente ao quadrado do valor numérico desta área.

Para cada grau de extinção química existente no coquetel de cintilação existirá uma eficiência de contagem específica, que corresponderá também a um valor de parâmetro livre específico. Portanto, mediante as eficiências, relacionando-se o grau de extinção química com os valores do parâmetro livre, obtém-se uma curva característica do sistema de detecção que independe do radionuclídeo da amostra, obtendo-se então uma curva universal para este sistema. Por exemplo, ao se relacionar os diferentes valores de eficiência de contagem, extinção química e parâmetro livre, obtidos através de medições com uma fonte de  $^3H$ , comparados com os valores obtidos de uma fonte de  $^{14}C$ , o sistema de medição apresentará os mesmos valores de parâmetro livre para ambas as fontes radioativas.

### 2.9.3 – Modelo Estatístico para o Parâmetro Livre

Neste modelo o Parâmetro Livre  $\mu$  é definido como o valor médio de energia necessária para produzir a emissão de um fotoelétron no fotocátodo, supondo que a sua resposta siga a distribuição de Poisson (MALONDA, 1993, p. 5). Como a emissão de elétrons é diretamente proporcional à quantidade de ionização produzida na solução cintiladora e também proporcional a energia  $E$  da partícula, então o número total de fotoelétrons emitidos será igual ao produto  $E \cdot Q(E)$ , em que  $Q(E)$  representa o valor da extinção química (*Quench*) em função da energia  $E$ .

Portanto, se  $m$  é o número médio de fotoelétrons emitidos, então o Parâmetro Livre  $\mu$  será dado pela equação

$$\mu = \frac{EQ(E)}{m} \quad (2.66)$$

Como  $m$ , baseado no modelo do corte energético, é calculado por

$$m = Q(E) s t q c p k E \quad (2.67)$$

então  $\mu$  pode ser calculado pela equação

$$\mu = \frac{EQ(E)}{Q(E)stqcpkE} = \frac{1}{stqcpk} \quad (2.68)$$

Observa-se que  $\mu$  independe da energia da partícula, porém varia de acordo com as características apresentadas pelo sistema de detecção.

Admitindo-se que os processos de emissão de elétrons pelo fotocatodo e a multiplicação nos dinodos de uma *FMT* obedeçam à estatística de Poisson, a probabilidade de se obter no anodo exatamente  $n$  elétrons, quando se espera em média  $m$ , para uma determinada quantidade de fótons que chegam ao fotocatodo, é dada pela equação  $p(n,m)$ .

$$p(n,m) = \frac{m^n e^{-m}}{n!} \quad (2.69)$$

Consequentemente, a probabilidade de não haver elétron na saída, mesmo havendo fótons no fotocatodo, corresponderá ao valor de  $p(n,m)$  fazendo-se  $n = 0$ , ou seja

$$p(0,m) = \frac{m^0 e^{-m}}{0!} = e^{-m} \quad (2.70)$$

Normalizando-se a área da distribuição para uma unidade, o seu valor numérico corresponderá ao da eficiência de detecção do espectro teórico de emissão, calculada pela equação

$$\varepsilon = 1 - p(0,m) = 1 - e^{-m} \quad (2.71)$$

Considerando-se agora um sistema com duas fotomultiplicadoras trabalhando em coincidência, produzindo em cada saída em média respectivamente  $m_1$  e  $m_2$  elétrons, então são válidas as seguintes eficiências de detecção:

$$\varepsilon_1 = 1 - p(0, m_1), \text{ para a via de contagem da fotomultiplicadora número um e}$$

$$\varepsilon_2 = 1 - p(0, m_2), \text{ para a via de contagem da fotomultiplicadora número dois.}$$

Logo, a eficiência de detecção das duas vias em coincidência será

$$\varepsilon_c = \varepsilon_1 \varepsilon_2 \quad (2.72)$$

Admitindo-se que as duas vias de contagem apresentem a mesma eficiência e que os fótons produzidos no processo de cintilação, gerando uma média total de  $m$  elétrons, sejam distribuídos igualmente para cada fotocátodo, tem-se  $m_1 = m_2 = \frac{m}{2}$  e então a eficiência de coincidência será  $\varepsilon_c = (1 - e^{-m/2})^2$ .

$$(2.73)$$

Submetendo-se o sistema de detecção a um conjunto monoenergético de partículas e extraindo-se o valor de  $m$  na equação 2.66 do parâmetro livre  $\mu$ , substituindo-o na equação anterior, pode-se expressar a eficiência  $\varepsilon_c$  como

$$\varepsilon_c = \left\{ 1 - e^{\left[ \frac{-EQ(E)}{2\mu} \right]} \right\}^2 \quad (2.74)$$

No caso do sistema estar submetido às emissões  $\beta$  de um radionuclídeo de energia máxima  $E_0$ , chega-se finalmente a eficiência de detecção expressa pela equação

$$\mathcal{E}_c = \int_0^{E_0} N(E) \left\{ 1 - e^{-\left[ \frac{EQ(E)}{2\mu} \right]} \right\}^2 d(E) \quad (2.75)$$

em que  $N(E)$  corresponde ao espectro de Fermi para o radionuclídeo considerado, cuja distribuição deve estar normalizada para uma unidade.

O cálculo de  $\mathcal{E}_c$  é obtido na prática por meio de um algoritmo de integração numérica com intervalo de integração composto por uma série de bandas fixas de energia, nas quais estão associados o total de eventos e os respectivos cálculos das eficiências de detecção em cada uma das bandas de energia.

#### **2.9.4 – Eficiência de detecção usando radionuclídeos que decaem por Captura Eletrônica Pura**

O cálculo da eficiência teórica em função do parâmetro livre ou figura de mérito  $\mu$  do sistema cintilador-amostra-fotomultiplicadora (LOS ARCOS, 1993, p. 11) também pode ser aplicado aos radionuclídeos que fazem captura eletrônica. Para isso é necessário conhecer como se processa a interação da energia liberada por este tipo de decaimento com a solução do coquetel cintilador.

A energia responsável pela excitação do cintilador na captura eletrônica pura tem origem nos elétrons Auger e raios X absorvidos no coquetel de cintilação. Esta energia varia entre 0 a 100 keV e, nesta faixa, os elétrons depositam na solução praticamente toda a sua energia, ao passo que os raios X podem escapar da região delimitada pelo volume do frasco de cintilação.

Para melhor caracterizar a resposta do cintilador é necessário um estudo detalhado das diferentes alternativas de reordenação nuclear adotadas pelo radionuclídeo, após capturar

um elétron. No caso da captura eletrônica pura, o detalhamento dos possíveis processos de reordenação é bastante complexo e requer o conhecimento de um elevado número de parâmetros atômicos e nucleares, que em muitas vezes não estão devidamente caracterizados e determinados. Por isso, torna-se conveniente trabalhar com um modelo simplificado, que seja suficientemente preciso para a finalidade desejada.

No modelo simplificado são consideradas somente as capturas que ocorram nas camadas K ou L, supondo que a energia dos elétrons Auger e raios X produzidos por capturas ocorridas nas camadas M ou outras acima não produzam contribuição apreciável para a eficiência de contagem, sendo então válida a seguinte relação de probabilidades.

$$P_K + P_L \leq 1 \quad (2.76)$$

Também não são detalhadas as sub-camadas existentes nas camadas L ou M, que são consideradas como únicas, e por isso os rendimentos Auger e de fluorescência adotados são respectivamente:

$$\omega_K \text{ e } 1 - \omega_K, \text{ para a cama K;}$$

$$\bar{\omega}_K \text{ e } 1 - \bar{\omega}_K, \text{ para a camada L.}$$

Como consequência somente se considera 4 grupos de elétrons Auger, que por suposição depositam toda a sua energia no cintilador, e 3 grupos de raios X, são eles:

- os elétrons Auger do grupo  $K_{LL}$ ,  $K_{LM}$ ,  $K_{MM}$  e  $L_{MM}$ , sendo considerados em cada grupo o valor médio do espectro de energias, cujas probabilidades satisfaçam as relações

$$P(K_{LL}) + P(K_{LM}) + P(K_{MM}) = 1 \quad \text{e} \quad P(L_{MM}) = 1 \quad (2.77)$$

- os raios X do grupo  $K_L$ ,  $K_M$  e  $L_M$ , sendo considerados em cada grupo a média ponderada da energia de seus componentes, cujas probabilidades satisfazem as relações

$$P(K_L) + P(K_M) = 1 \quad \text{e} \quad P(L_M) = 1. \quad (2.78)$$

Diferentemente dos elétrons Auger, os raios X podem atravessar a solução cintiladora e alcançar a parede do frasco, não tendo então a totalidade de sua energia detectada.

As probabilidades de escape dos raios X ( $I_K$  para a linha  $K\alpha$ ,  $I_{K'}$  para a linha  $K\beta'$  e  $I_L$  para os raios  $X_L$ ) dependem do volume, composição da solução cintiladora, do ponto e direção de emissão. Estas probabilidades em função da energia são calculadas por meio de um programa de Monte Carlo adaptado à geometria cilíndrica, com diâmetro de 25 mm, para diferentes volumes de solução e diferentes tipos de cintiladores, conforme ilustrado na Figura 2.11.

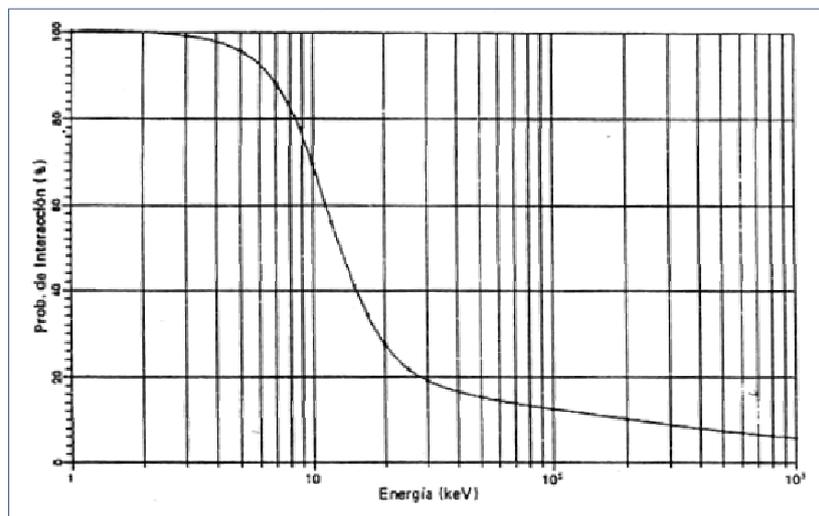


Figura 2.11– Probabilidade de escape dos raios X para o Tolueno (LOS ARCOS,1993,p. 12).

Levando-se em consideração as hipóteses derivadas do modelo simplificado para as alternativas de reordenação atômica na captura eletrônica pura, chega-se a 21 possíveis vias de reordenação. Cada via possui uma probabilidade de ocorrência e deposita no cintilador uma energia específica, conforme ilustrado na tabela 2.23, na qual:  $E_{XYZ}$  é a energia de um elétron Auger XYZ;  $E_{YZ}$  é a energia de um raio XYZ subtraído da energia de ligação K do carbono;  $E_c$  é a energia dos raios  $X_K$  do carbono; e  $Q(E)$  é a função de ionização da teoria de Birks (SÁNCHEZ, 1993), calculado pela equação

$$Q(E) = \frac{1}{E} \int_0^E \left( \frac{dE}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \right) \quad (2.79)$$

Tabela 2.23 – Energia associada às vias de reordenação do modelo simplificado de captura eletrônica pura.

<i>Via de reordenação</i>	<i>Energia efetiva, corrigida para a extinção por ionização associada à via de reordenação</i>
1	$E_1 = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + 2 E_{LMM} Q(E_{LMM})$
2	$E_2 = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + E_{LMM} Q(E_{LMM})$
3	$E_3 = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + E_{LMM} Q(E_{LMM}) + E_{LM} Q(E_{LM}) + E_c Q(E_c)$
4	$E_4 = E_{KLL} Q(E_{KLL})$
5	$E_5 = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + E_{LM} Q(E_{LM}) + 2 E_c Q(E_c)$
6	$E_6 = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + 2 E_{LMM} Q(E_{LMM}) + 2 E_c Q(E_c)$
7	$E_7 = E_{LMM} Q(E_{LMM})$
8	$E_8 = E_{LMM} Q(E_{LMM}) + E_{KL} Q(E_{KL}) + E_c Q(E_c)$
9	$E_9 = 0$
10	$E_{10} = E_{KL} Q(E_{KL}) + E_c Q(E_c)$
11	$E_{11} = 2 E_{KL} Q(E_{KL}) + 2 E_c Q(E_c)$
12	$E_{12} = E_{KL} Q(E_{KL}) + E_c Q(E_c)$
13	$E_{13} = E_{KLL} Q(E_{KLL}) + E_{LMM} Q(E_{LMM})$
14	$E_{14} = E_{KLM} Q(E_{KLM})$
15	$E_{15} = E_{KLM} Q(E_{KLM}) + E_{LM} Q(E_{LM}) + E_c Q(E_c)$
16	$E_{16} = E_{KMM} Q(E_{KMM})$
17	$E_{17} = 0$
18	$E_{18} = E_{KM} Q(E_{KM})$
19	$E_{19} = 0$
20	$E_{20} = E_{LM} Q(E_{LM}) + E_c Q(E_c)$
21	$E_{21} = E_{LMM} Q(E_{LMM})$

## 2.10 – O Método CIEMAT–NIST.

Este método foi desenvolvido na década de 80, através de um projeto de cooperação científica entre o CIEMAT da Espanha e o NIST dos EUA, sendo atualmente utilizado por vários laboratórios de metrologia em todo o mundo. É um método relativo de calibração e portanto necessita que o sistema ou equipamento de detecção seja submetido previamente

aos efeitos da radiação proveniente de amostras de uma solução padrão de atividade conhecida para que a sua resposta possa ser determinada e, em função desta, poder calcular a atividade das outras soluções radioativas que se desejar calibrar. O método baseia-se no conceito do parâmetro livre ou figura de mérito, valor médio de energia necessária para que o fotocátodo de uma fotomultiplicadora do sistema de medida emita um elétron. Por ser uma característica somente do sistema de detecção, o conhecimento de cada parâmetro livre deste sistema possibilita ao método CIEMAT–NIST ser um método relativo de calibração, que só precisa conhecer a atividade da solução padrão de um único radionuclídeo. No ano 2000 este método foi implantado no SEMRA (LOUREIRO).

O radionuclídeo usualmente adotado como padrão pelos laboratórios de metrologia que implementaram o método CIEMAT–NIST é o  $^3H$  e as principais características responsáveis pela preferência deste radionuclídeo (MALONDA, 1993) em relação aos outros estão descritas na tabela 2.24.

Tabela 2.24 – Características de um coquetel de cintilação líquida preparado com  $^3H$ .

Apresenta o espectro $\beta$ menos sujeito à deformação Coulombiana
Por ser um emissor de baixa energia é o que exige a maior sensibilidade do equipamento
Pode ser obtido em soluções orgânicas para simplificar a incorporação nos cintiladores
Está disponível em soluções de elevada pureza
Possui uma meia-vida relativamente longa
Produce reduzida transmissão de erros na determinação da eficiência de outro radionuclídeo

Como o parâmetro livre depende somente das características do sistema de detecção e não do radionuclídeo (ver item 2.9.3), a vantagem apresentada por este método de calibração é que, uma vez conhecendo-se uma “resposta real”, obtida a partir das medições de uma série de coquetéis preparados com a mesma solução padrão, é possível também obter uma “resposta virtual” para qualquer outro radionuclídeo, tomando-se como referência as eficiências de detecção obtidas com os coquetéis da solução padrão. Desta forma, ao usar quantidades conhecidas da solução padrão e variar as características químicas dos coquetéis, se estará medindo na realidade a capacidade real do equipamento “responder” às diferentes condições de detecção que foram criadas. Em outras palavras, se estará

conhecendo, através das diferentes eficiências de detecção, os diferentes valores experimentais de parâmetros livres do equipamento ou sistema de detecção.

De posse dos diferentes parâmetros livres, basta utilizar a teoria específica para cada tipo de transição nuclear e aplicá-la, por meio de programas de computador, às diferentes condições de detecção do sistema de medição, determinando-se deste modo uma curva de eficiência teórica para o radionuclídeo da amostra cuja atividade se deseja calibrar, sem a necessidade de usar uma solução padrão. Além da teoria do decaimento radioativo, estes programas fazem uso também dos parâmetros nucleares do radionuclídeo envolvido no processo de calibração e da resposta do sistema às medições com os coquetéis contendo a solução traçadora de  $^3H$ , produzindo na saída uma curva de eficiência teórica versus parâmetro livre.

O programa de computador utilizado para elaborar as curvas de eficiência teórica terá que possuir algoritmos específicos para os modelos de desintegração dos seguintes tipos de decaimento radioativo: emissão  $\beta$  pura; emissão de partículas  $\beta$  seguida de fótons  $\gamma$ ; captura eletrônica pura; e captura eletrônica seguida da emissão de raios X.

Para variar a eficiência de detecção do equipamento pode ser adicionada uma substância química que consiga absorver parte da energia liberada no coquetel de cintilação sem produzir fótons. A esta substância dá-se o nome de agente produtor de extinção química, agente extintor ou ainda agente de *Quench*. Entre as substâncias mais utilizadas como agente extintor estão o tetracloreto de carbono e o nitrometano.

Operacionalmente determina-se a resposta do sistema de detecção realizando a medição de uma série de amostras preparadas com aproximadamente a mesma quantidade da solução-padrão e quantidades crescentes da substância produtora de extinção química. Como a atividade do padrão é conhecida e cada amostra apresenta eficiência de detecção diferente, obtém-se uma curva de calibração experimental do sistema. Esta curva é expressa em eficiência de contagem versus extinção química (*Quench*).

De posse da curva de eficiência experimental do padrão, a medição dos coquetéis cintiladores é realizada e os dados obtidos são transferidos para o programa de computador que construirá a curva de eficiência teórica específica para o radionuclídeo da amostra. As eficiências que foram calculadas teoricamente em função dos parâmetros livres do sistema de detecção correspondem àquelas que seriam obtidas caso a curva de eficiência utilizada fosse construída experimentalmente a partir de uma solução padrão do mesmo radionuclídeo.

A determinação da eficiência teórica e da atividade da amostra é realizada por um programa de computador que leva em consideração os seguintes dados: as medições dos coquetéis da solução padrão; as medições dos coquetéis da solução de atividade desconhecida; e as curvas de eficiência teórica, do padrão e do radionuclídeo da solução a ser calibrada. A determinação da eficiência de contagem é feita por meio de interpolação entre pontos das curvas de eficiência teórica e experimental, enquanto que o cálculo da concentração de atividade é feito dividindo-se as contagens obtidas com os coquetéis da solução a ser calibrada, pelo produto entre as eficiências teóricas destas e as respectivas massas de radionuclídeo nos coquetéis.

Até o presente momento o SEMRA/IRD vem utilizando programas de computador escritos na linguagem FORTRAN e que foram criados na época do desenvolvimento do método CIEMAT–NIST, que são os seguintes: EFFY, algoritmo que cria as curvas de eficiência teórica para emissores  $\beta$  puros; CEGA e CEGA2, algoritmo que cria as curvas de eficiência teórica para emissores que fazem captura eletrônica; EBEGA, algoritmo que cria as curvas de eficiência teórica para emissores  $\beta$ – $\gamma$ ; e LSCP, algoritmo que calcula a eficiência de detecção e a concentração de atividade das amostras radioativas (LOUREIRO, p. 47, 96 e 185).

Uma representação simbólica do mecanismo de funcionamento do método CIEMAT–NIST está ilustrada no diagrama da figura 2.12.

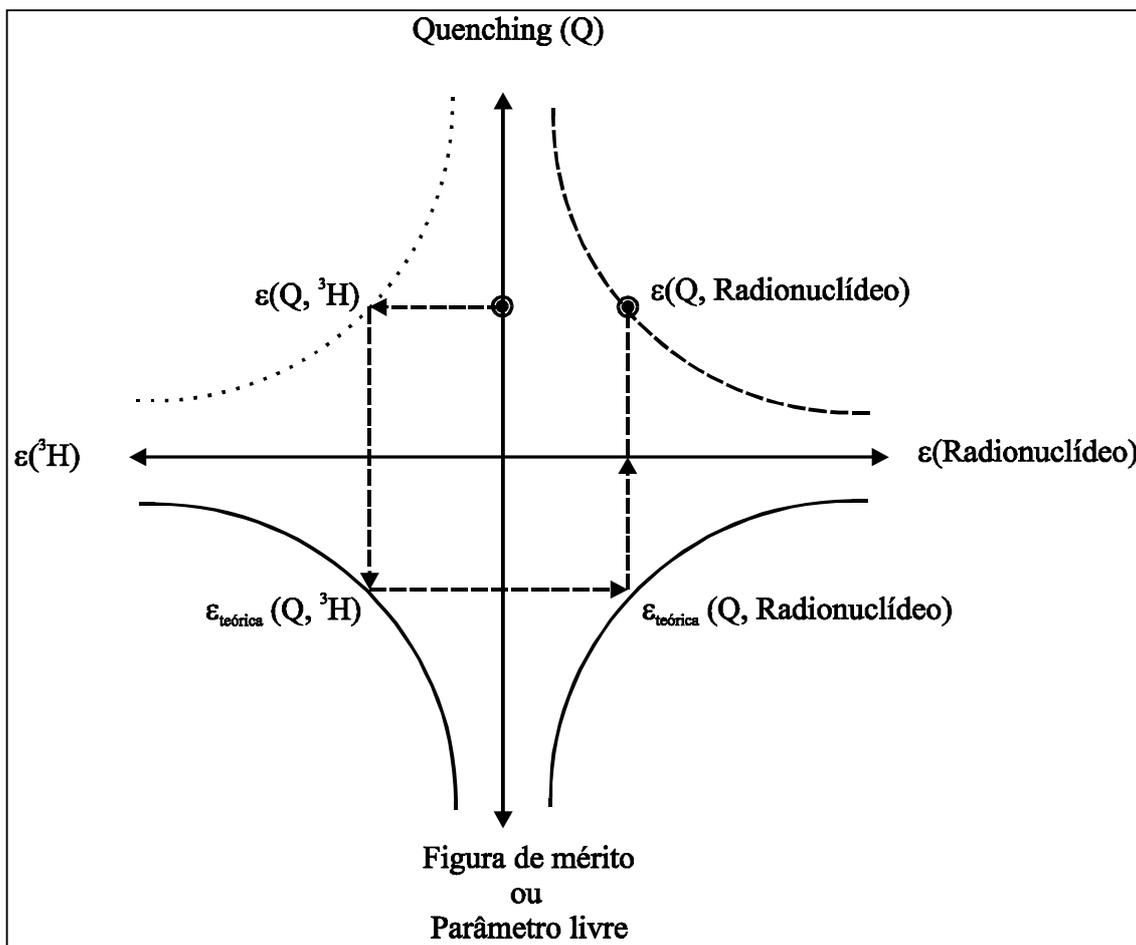


Figura 2.12 – Representação do processo de calibração com o método CIEMAT–NIST .

Com o método CIEMAT–NIST consegue-se padronizar a atividade de amostras radioativas de maneira mais precisa, em muitos casos, que nos métodos tradicionais.

## Capítulo 3

### METODOLOGIA E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

A execução deste trabalho objetivou a criação de possibilidades para a realização dos seguintes tipos de experimentos:

- medições com um sistema de coincidência  $\gamma$ -X, usando um cristal de iodeto de sódio e outro de germânio e variando a eficiência com a distância amostra-detector ou inserindo absorvedor entre a amostra e um dos detectores;
- medições com a câmara para detecção com cintiladores líquidos, deslocando-a entre os detectores do sistema de coincidência;
- medições com a câmara para detecção com cintiladores líquidos, mantendo as duas *FMTs* na posição de maior aproximação e padronizando amostras pelo método CIEMAT-NIST;
- medições com um sistema de coincidência fóton-partícula, usando o detector de iodeto de sódio para os fótons e variando a eficiência de detecção das partículas pelo afastamento entre as duas fotomultiplicadoras da câmara para detecção com cintiladores líquidos;
- medições só no detector de germânio, usando espectrometria  $\gamma$ .

#### 3.1 – Estratégia de implementação

A metodologia utilizada consistiu na separação do trabalho em seis partes, cada uma atendendo a um objetivo específico.

A primeira parte foi dedicada à procura por um bom ambiente para a medição das amostras, de forma que reunisse condições adequadas ao funcionamento dos sistemas de padronização abrangidos no escopo do trabalho.

A segunda parte consistiu no projeto de uma câmara para detecção construída especialmente para o uso com cintiladores líquidos, agregando também a capacidade de movimentação das fotomultiplicadoras existentes em seu interior.

A terceira parte tratou da construção de um suporte com característica multifuncional para a medição das amostras, de forma a permitir tanto a operação isolada de cada um dos três sistemas de padronização abordados no trabalho, quanto operar simultaneamente diferentes combinações entre os três sistemas.

Na quarta parte foram realizados ensaios experimentais para encontrar as condições operacionais mais adequadas para o funcionamento de cada sistemas de padronização

A quinta parte foi dedicada aos testes de padronização, utilizando amostras preparadas com radionuclídeos especialmente selecionados para atender as características de decaimento radioativo e aplicação, conforme definição nos objetivos do trabalho.

Na sexta e última parte foram realizadas comparações entre os resultados obtidos com os sistemas de padronização abordados neste trabalho e com os obtidos por outros sistemas usados no SEMRA/LNMRI/IRD.

### **3.2 – Escolha do ambiente para a realização das medições**

A primeira parte deste trabalho foi dedicada à seleção do ambiente para a realização dos experimentos de medição e começou pela escolha dos seguintes tipos de detectores:

- o primeiro para fótons  $\gamma$ , com um detector acoplado a uma fotomultiplicadora – *FMT* e usando um cristal de Iodeto de sódio ativado com Tálcio – *NaI(Tl)* de 2 x 2 polegadas;
- o segundo para fótons  $\gamma$  e raios X de até 100 keV, usando um detector semicondutor com cristal de germânio intrínseco de alta pureza – *HPGe* e janela de berílio, possuindo área sensível com diâmetro externo de 3 polegadas;

- o terceiro para detecção com cintiladores líquidos, usando duas *FMTs* de resposta rápida, com 2 polegadas, localizadas no interior de uma câmara protegida contra a incidência de luz ambiente.

Nesta parte do trabalho buscou-se encontrar um ambiente de medição apropriado para o bom funcionamento do detector de maior capacidade de resolução e no caso dos três tipos utilizados, o de germânio é o de maior sensibilidade e por isso deve estar localizado em ambiente de reduzido background e mínimo retro-espalhamento dos fótons da amostra que atingirem internamente as paredes da blindagem. Como construir uma blindagem com as características citadas demandaria muito tempo, foi decidido implantar o sistema proposto por meio da adaptação do ambiente de medições já utilizado na calibração por espectrometria gama do SEMRA/LNMRI/IRD, tendo em vista que a blindagem de chumbo deste ambiente é revestida internamente com uma camada de alumínio e outra de cobre.

O revestimento interno com materiais de baixo número atômico, como o alumínio e o cobre, tem a finalidade de absorver energia dos fótons da amostra que interagirem parcialmente com o detector e atingirem internamente a parede da blindagem de chumbo, podendo ser espalhados e computados em duplicidade se retornarem ao detector.

### **3.3 – Projeto e montagem da Câmara para detecção com Cintiladores Líquidos**

A segunda parte deste trabalho foi dedicada ao projeto e construção de uma Câmara para Detecção com Cintiladores Líquidos – *CDCL* que apresentasse uma boa blindagem contra a luz ambiente e flexibilidade para a realização de medições com as fotomultiplicadoras se afastando uma da outra. Também foi considerado importante poder padronizar a amostra no interior desta câmara pelo método de coincidência e por isso decidiu-se usar uma prateleira do suporte de fontes como base de apoio para a *CDCL* poder operar simultaneamente com o método CIEMAT–NIST e como amostra radioativa para o método de coincidência.

A *CDCL* é composta por uma célula cilíndrica vertical, com 10,5 cm de diâmetro e 7 cm de altura, construída com PVC branco não transparente e no eixo horizontal está acoplada com dois tubos de PVC preto, que servem ao mesmo tempo como suporte para a movimentação das fotomultiplicadoras em seu interior e também de blindagem contra a incidência de luz do ambiente exterior. No interior da célula existem duas cavidades cilíndricas que se interceptam: uma horizontal aberta, para encaixar um tubo de PVC em cada extremidade; e uma vertical fechada no fundo e vedada por uma tampa na parte superior, que serve como acesso ao frasco contendo o coquetel cintilador com a solução radioativa a ser padronizada.

Os divisores de tensão foram montados no interior de dois cilindros construídos com PVC e projetados para funcionarem acoplados com as *FMTs* e com as fitas metálicas tracionadoras, que possibilitam a movimentação do conjunto no interior dos tubos fixados em cada extremidades da cavidade horizontal da *CDCL*, conforme ilustrado pelo diagrama esquemático da figura 3.1.

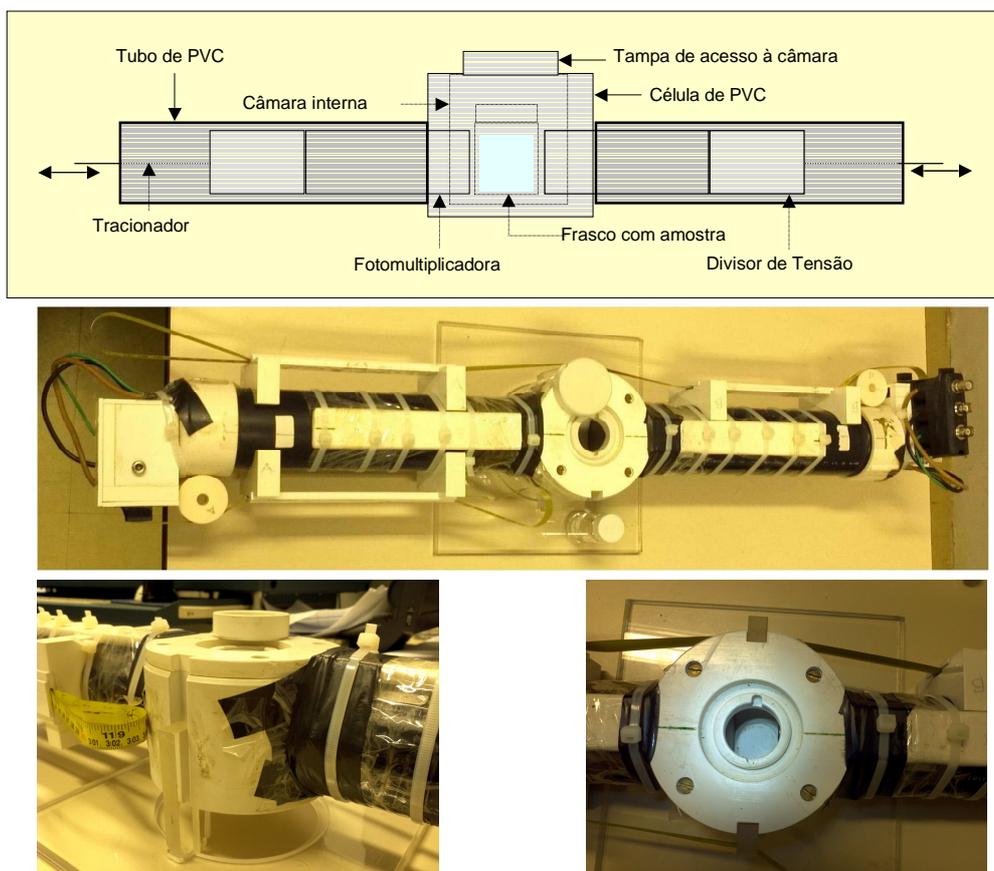


Figura 3.1 – Diagrama esquemático e fotos da *CDCL*.

### **3.4 – Projeto e montagem do suporte de fontes para medições simultâneas com diferentes métodos de padronização**

A terceira parte foi dedicada à construção de um suporte para os detectores e amostras, que atendesse as necessidades de medição dos métodos de padronização selecionados e ao mesmo tempo permitisse a utilização do sistema de calibração por espectrometria  $\gamma$  já existente no SEMRA. O suporte de fontes do sistema já implantado estava fixado no fundo da blindagem, sobre a parte sensível do detector de germânio, e foi construído com acrílico na forma de uma estante com 63 cm de altura e base de 10x10 cm, com encaixes laterais para posicionar a prateleira de acomodação das amostras.

Como a *CDCL* ficou um pouco pesada após a montagem, o uso do suporte de acrílico foi descartado e em substituição utilizou-se a parte destinada ao encaixe de módulos eletrônicos de uma antiga fonte de alimentação do tipo NIM-BIN, adaptando-a como suporte para medições de amostras e sustentação da *CDCL* e do detector de iodeto de sódio. Possuindo boa resistência mecânica e baixa probabilidade para espalhar fótons o novo suporte de alumínio foi fixado no fundo da blindagem envolvendo a parte sensível do detector de germânio, de forma que seus encaixes posicionem horizontalmente, a cada 3,4 cm de altura, duas prateleiras de acrílico, com 20x20 cm: uma perfurada no centro e usada na região superior do suporte como base de apoio para o deslocamento vertical do detector de iodeto de sódio; a outra servindo como base de apoio para o deslocamento vertical da *CDCL*, posicionada entre os detectores de germânio e iodeto de sódio.

Para mover os detectores de germânio e iodeto de sódio em passos menores do que os 3,4 cm existentes entre os encaixes do suporte de alumínio, quatro eixos verticais foram fixados na prateleira superior para guiar o deslocamento de uma pequena base retangular perfurada no centro para sustentar o movimento do detector de iodeto de sódio sobre a sua própria prateleira. Com isto tornou-se possível graduar o deslocamento vertical deste detector em passos de 3,4 cm combinados com passos de 0,5 cm, por meio da inserção de calços entre a superfície da prateleira superior e a base móvel de sustentação do detector de iodeto de sódio.

Foram abertos dois sulcos em cada lado da superfície externa da célula de PVC, posicionados perpendicularmente em relação ao eixo das *FMTs*, para serem usados como canal de deslizamento vertical da *CDCL* entre duas barras de acrílico fixadas sobre a prateleira que lhe serve como base de apoio; desta forma, é possível deslocamentos de 3,4 cm entre os encaixes do suporte de alumínio, bem como empilhar calços entre o fundo célula de PVC e a prateleira de apoio da *CDCL*, movimentando-a em passos de 0,5 cm entre duas posições contíguas de encaixe. A figura 3.2 ilustra o diagrama esquemático do ambiente para medições simultâneas com diferentes métodos de padronização de amostras radioativas.

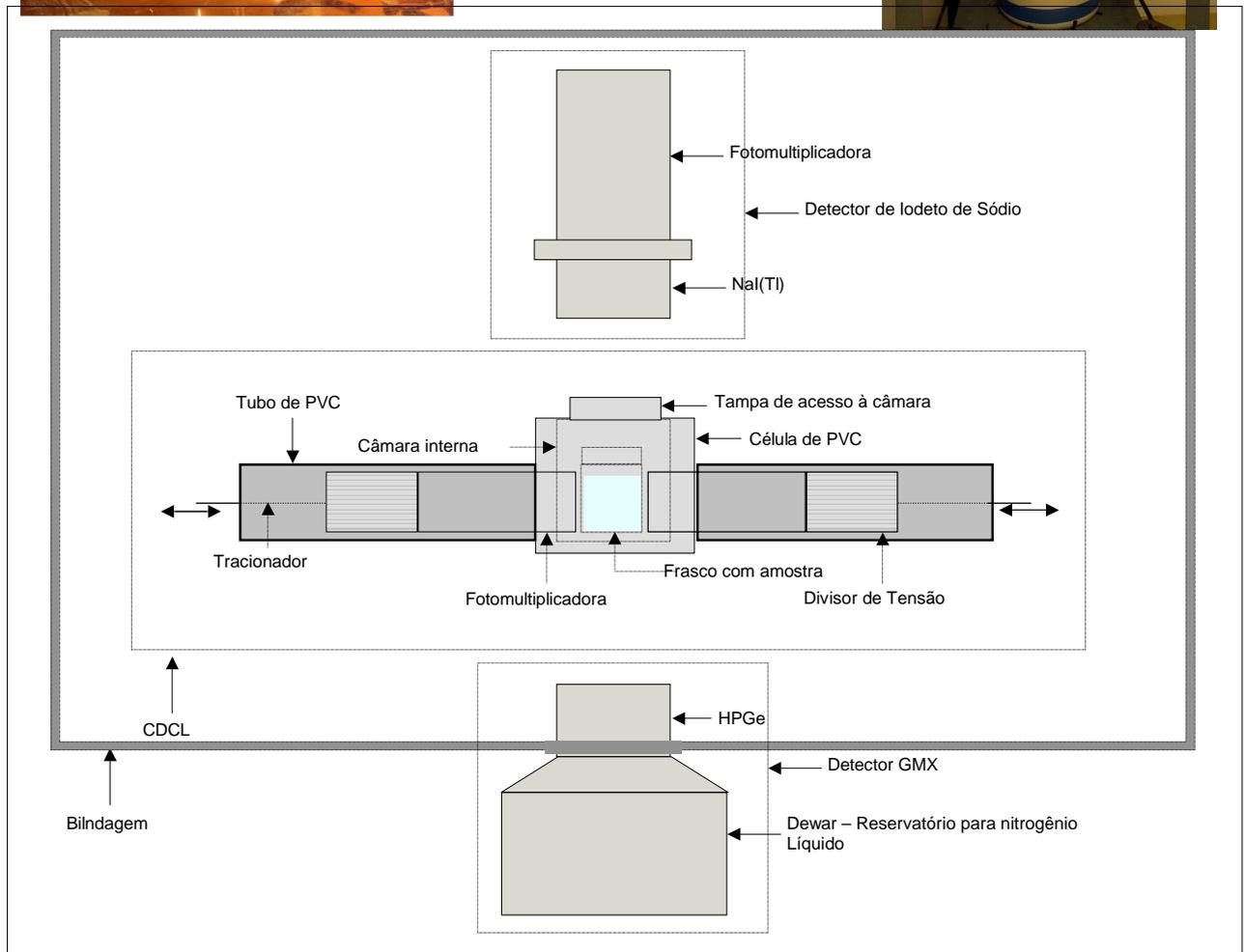
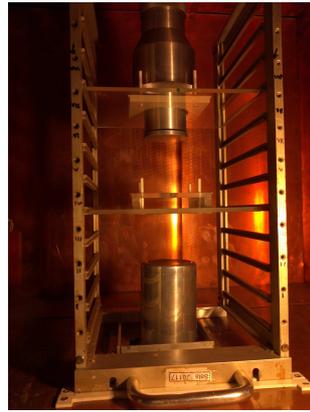


Figura 3.2 - Fotos e diagrama esquemático do ambiente para medições simultâneas com diferentes métodos de padronização de amostras radioativas.

### 3.5 – Determinação das condições operacionais

A quarta parte deste trabalho foi dedicada aos procedimentos para a determinação das condições operacionais dos sistemas de detecção utilizados. Os experimentos foram realizados em três diferentes laboratórios do SEMRA/LNMRI/IRD, são eles: o Laboratório para Espectrometria X e  $\gamma$ , onde foi montado o ambiente para medições das amostras; o Laboratório de Cintilação Líquida, onde estão localizados os analisadores monocanais, a unidade de coincidência e o microcomputador com interface para a aquisição dos dados provenientes da *CDCL*; e o Laboratório de Padronização Absoluta  $4\pi\beta-\gamma$ , onde estão localizados os sistemas de coincidência e anti-coincidência. A instrumentação eletrônica utilizada foi dividida em três conjuntos de equipamentos.

O primeiro conjunto consiste nos módulos eletrônicos conectados a um bastidor de alimentação para módulos eletrônicos do tipo NIM-BIN, modelo 2000 fabricado pela CANBERRA, localizado no Laboratório para Espectrometria X e  $\gamma$ , ao lado da blindagem usada pelo ambiente de medições, cuja finalidade é a de alimentar os módulos eletrônicos responsáveis pela geração da alta tensão para os detectores e os responsáveis pela pré-amplificação e amplificação dos sinais de saída de cada detector, enviando-os para serem processados pela instrumentação dos outros dois conjuntos de módulos eletrônicos.

O segundo conjunto consiste nos módulos eletrônicos responsáveis pela conformação e ajuste dos sinais de saída dos amplificadores utilizados por cada detector, conectados a um bastidor de alimentação para módulos eletrônicos do tipo MINIBIN, modelo 4001M fabricado pela CANBERRA, podendo ser operado em qualquer um dos três laboratórios utilizados.

O terceiro conjunto consiste na instrumentação eletrônica utilizada pelos sistemas de coincidência e de anti-coincidência, que estão implantados no Laboratório de Padronização Absoluta  $4\pi\beta-\gamma$ .

Em relação aos dois primeiros tipos de detectores utilizados, respectivamente o de Iodeto de sódio e de germânio, a determinação das condições operacionais resumiram-se na

escolha dos valores de alta tensão para os detectores e no ajuste de parâmetros dos amplificadores usados para processar diretamente o sinal de saída dos detectores.

Para o detector de Iodeto de Sódio os módulos eletrônicos e as condições operacionais selecionadas foram: uma fonte de alta tensão, modelo 478 da ORTEC, com HV = 870 V; um pré-amplificador modelo PM-211 do IPEN; e um amplificador, modelo 490B da ORTEC, com o ganho grosso = 8 e o ganho fino = 5.

Para o detector de germânio os módulos eletrônicos e as condições operacionais selecionadas foram: uma fonte de alta tensão, modelo 478 da ORTEC, com HV = -3000V; e um amplificador, modelo 490B da ORTEC, com o ganho grosso, ganho fino e constante de tempo ajustados de acordo com o radionuclídeo da amostra a padronizar.

As condições operacionais da *CDCL* só foram determinadas após a realização de testes para verificar o comportamento da câmara de cintilação operando com as seguintes características de reflexão na cavidade interna para acomodação das amostras: sem revestimento; revestida com folhas de mylar aluminizado; e revestida com um filme de papel coberto com tinta refletora à base de dióxido de titânio. A *CDCL* operando com a câmara de cintilação sem nenhum revestimento interno apresentou a melhor resposta espectral.

A *CDCL* foi montada utilizando duas *FMTs*, modelo 9635QB fabricado pela THORN-EMI, já existentes no SEMRA/LNMRI/IRD, cujas condições operacionais foram determinadas pela observação da forma do espectro e eficiência de detecção obtidos com uma série de medições de uma amostra padrão de  $^3H$ , aplicando às *FMTs* o mesmo potencial de HV em valores crescentes. Para as duas *FMTs* foi utilizada somente uma fonte de alta tensão modelo NV-32A da HARSHAW e o valor de HV considerado adequado foi 1500 V.

Os pulsos eletrônicos obtidos nos anodos de cada *FMT* da *CDCL* são trabalhados em vias eletrônicas independentes e conectados cada um na entrada de um pré-amplificador, modelo 4007 da Micronal, cuja saída por sua vez é conectada na entrada de um

amplificador, modelo 572 da ORTEC. Para a realização de futuros experimentos também foram disponibilizados sinais de saída obtidos diretamente no décimo dinodo de cada *FMT* da *CDCL*.

A equalização na sensibilidade de detecção das *FMTs* da *CDCL* é realizada por meio de ajuste individual no ganho fino de cada amplificador. Os amplificadores são sempre ajustados com o mesmo valor de ganho grosso, escolhidos de acordo com a condição do sinal obtido na saída ao realizar a medição de amostras com diferentes radionuclídeos.

A soma dos pulsos analógicos dos amplificadores é conectada na entrada de sinal de um analisador multicanal (Multi Channel Analyzer – *MCA*), que armazena o espectro de amplitude dos pulsos detectados, enquanto que os pulsos lógicos obtidos na saída de cada *SCA* são enviados para duas entradas de uma unidade de coincidência. Os pulsos lógicos em coincidência têm a largura ajustada adequadamente por um circuito linear gate, que os enviam para a totalização em um contador digital e ao mesmo tempo para acionar a porta de entrada – gate do *MCA*, que funciona como um gatilho para sincronizar o espectro de amplitude com os pulsos coincidentes.

As amostras radioativas foram confeccionadas usando pesagem diferencial em micro-balança para as soluções radioativas e carreadoras, por meio de aspiração para o interior de picnômetros (frasco de polietileno com volume de 5 ml e extremidade capilar para sucção), e volumetria para os cintiladores líquidos.

### **3.6 – Teste dos sistemas de detecção**

A quinta parte deste trabalho foi dedicada aos testes de validação dos sistemas de detecção por meio da padronização de amostras preparadas com os radionuclídeos  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  e  $^{60}\text{Co}$ . Os testes foram divididos em três partes: a primeira consistiu no teste de validação do sistema usando o detector de Iodeto de Sódio e a *CDCL* operando com o afastamento das *FMTs*, para reduzir a eficiência de detecção das partículas; a segunda consistiu no teste de validação do método CIEMAT–NIST realizando medições

só na *CDCL* operando com as *FMTs* fixas na posição de máxima aproximação; e a terceira consistiu no teste do sistema usando o detector de germânio, mantido fixo, e movendo-se o detector de Iodeto de Sódio juntamente com a amostra ou mantendo-se os detectores fixos e inserindo absorvedores entre a amostra e um deles.

### **3.6.1 – Teste de validação do sistema usando o detector de Iodeto de Sódio e a *CDCL***

O objetivo principal do teste foi validar a *CDCL* por meio da verificação de sua operação ao trabalhar em conjunto com o detector de Iodeto de Sódio, padronizando amostras com radionuclídeos que emitem partículas seguidas de fótons e usando o método de anti-coincidência (BRYANT, 1962 e 1967; DE CARLOS J. E. et al, 1973; BAERG et al, 1976). A construção da curva de extrapolação do parâmetro de eficiência na detecção das partículas foi feita por meio do afastamento gradual das duas *FMTs* (Hwang, H. Y. et al, 2006) da *CDCL*, começando do ponto de maior aproximação entre elas e acrescentando 1 cm de afastamento (0,5 cm para cada *FMT*) a cada novo ciclo de medições até atingir a distância máxima 7,0 cm.

A figura 3.3 contém o diagrama de blocos da instrumentação utilizada neste teste; sendo que no quadro pontilhado superior estão representados os equipamentos necessários para operar a *CDCL* e o detector de Iodeto de sódio, enquanto no inferior estão os equipamentos do sistema de anti-coincidência (DA SILVA, 2008) utilizados no experimento.

As medições dos fótons de cada radionuclídeo foram sempre precedidas de discriminação na altura dos pulsos de saída do amplificador da via correspondente, ajustando-se a janela de entrada do sistema da anti-coincidência de acordo com a faixa de energia considerada adequada para a medição da amostra a ser padronizada. Para as partículas não houve discriminação de pulsos, sendo mantida a janela de entrada específica do sistema da anti-coincidência toda aberta, e as medições foram realizadas em ciclos com as *FMTs* da *CDCL* localizadas a cada ciclo em diferentes distâncias em relação à posição de maior aproximação da parede do frasco com a solução cintiladora, considerada como a

posição 0 cm, e a partir daí posicionadas em 0,5 cm, 1,0 cm, 1,5 cm, 2,0 cm, 2,5 cm, 3,0 cm e 3,5 cm.

A validação da *CDCL* foi realizada com a calibração de quatro amostras de  $^{243}\text{Am}$  e três de  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ . Também foram calibradas três amostras de  $^{60}\text{Co}$ , que serviram como validação da *CDCL* operando com método CIEMAT–NIST. Nas figuras 3.4 e 3.5 estão ilustrados os esquemas de decaimento simplificado e janelas de detecção selecionadas para o  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Np}$  e  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ .

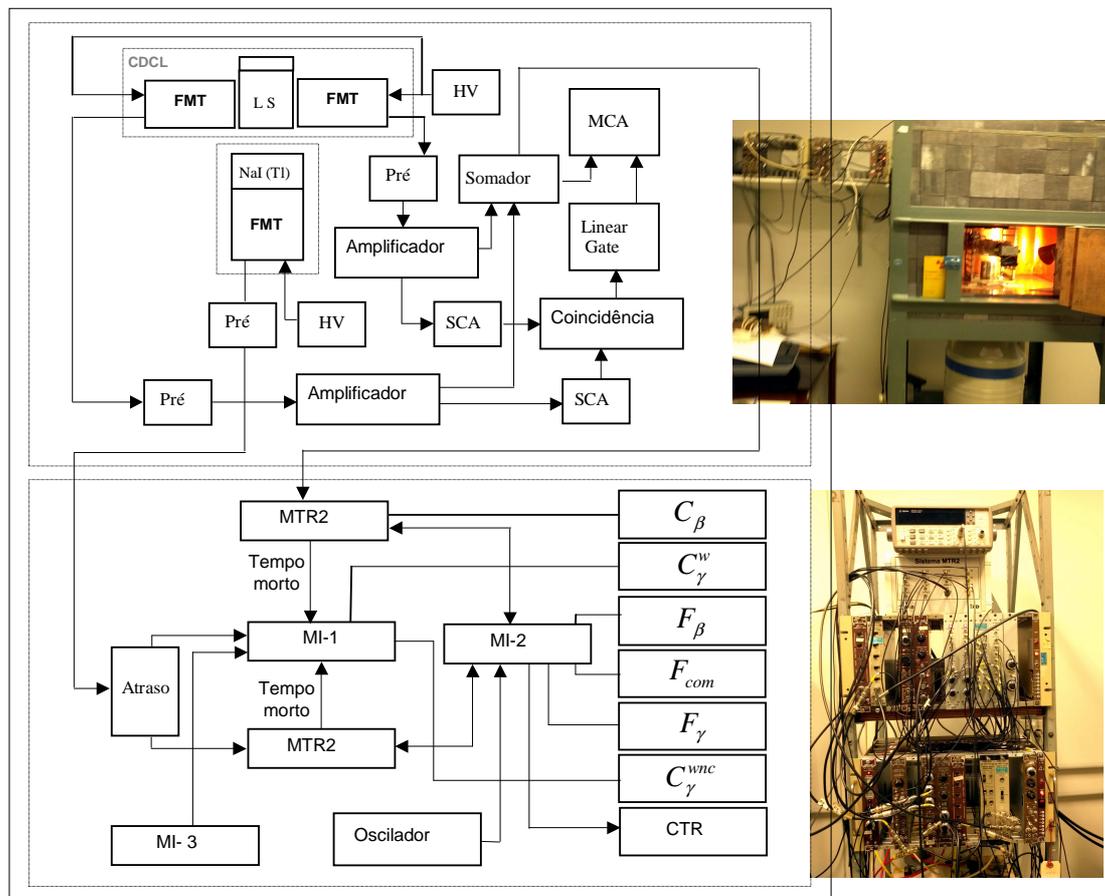


Figura 3.3 – Diagrama de blocos e fotos do sistema usando o método de anti-coincidência operando com a *CDCL* e o detector de Iodeto de Sódio.

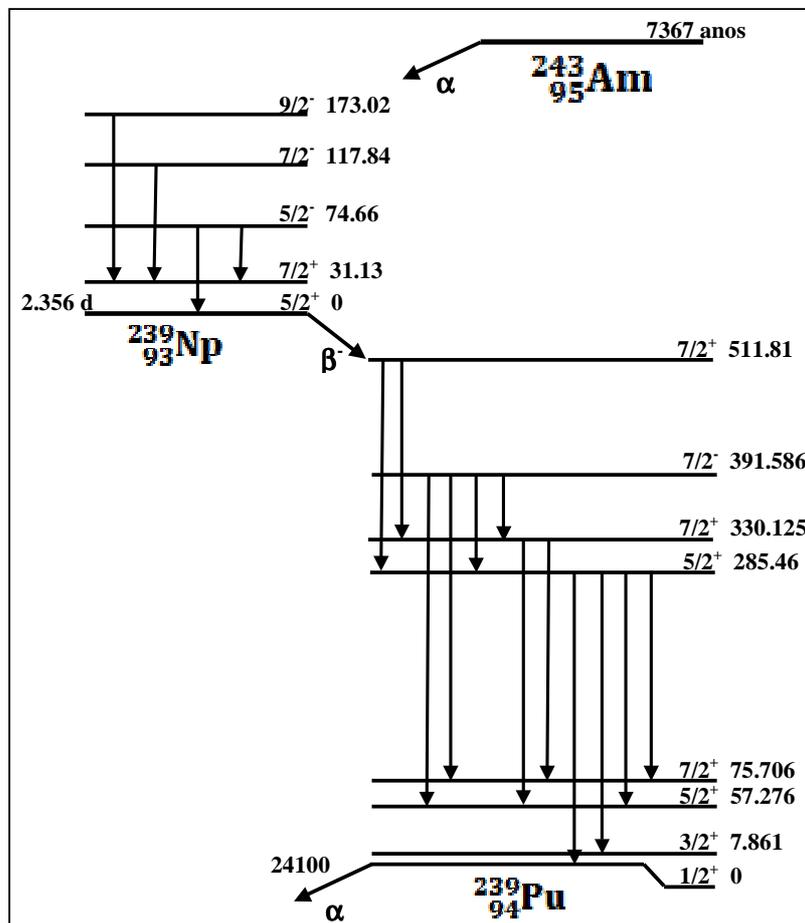


Figura 3.4 – Esquema simplificado de decaimento do  $^{243}\text{Am}$  e  $^{239}\text{Np}$ .

O  $^{243}\text{Am}$  é um radionuclídeo complexo com meia-vida de 7367 anos que emite partículas  $\alpha$  com até 15 diferentes energias e se transforma no  $^{239}\text{Np}$ , do qual serão emitidos 12 fótons  $\gamma$  de um dos seus 16 níveis de excitação. Das partículas  $\alpha$  emitidas pelo  $^{243}\text{Am}$  somente duas possuem probabilidades de emissão maiores que 5%, sendo uma de 5233 keV com 11,5% e a outra de 5275 keV com 86,7%. No caso dos fótons  $\gamma$  emitidos pelo  $^{239}\text{Np}$  somente dois possuem intensidades absolutas maiores que 5%, sendo um de 43,5 keV com 5,9%, do terceiro para o primeiro nível e o outro de 74,7 keV com 67,2%, do terceiro para o nível básico.

A importância de padronizar fontes radioativas contendo o  $^{243}\text{Am}$  decorre do fato deste radionuclídeo poder ser usado como traçador radioquímico na determinação de  $^{241}\text{Am}$  existente em amostras ambientais, de alimentos e de outros tipos. O  $^{241}\text{Am}$  normalmente é produzido nos reatores nucleares e juntamente com o  $^{237}\text{Np}$  e outros produtos de fissão são liberados no meio ambiente pelas atividades da indústria nuclear; sendo de grande importância então dispor de métodos diretos ou indiretos capazes de monitorar e quantificar a sua presença nos efluentes das usinas nucleares.

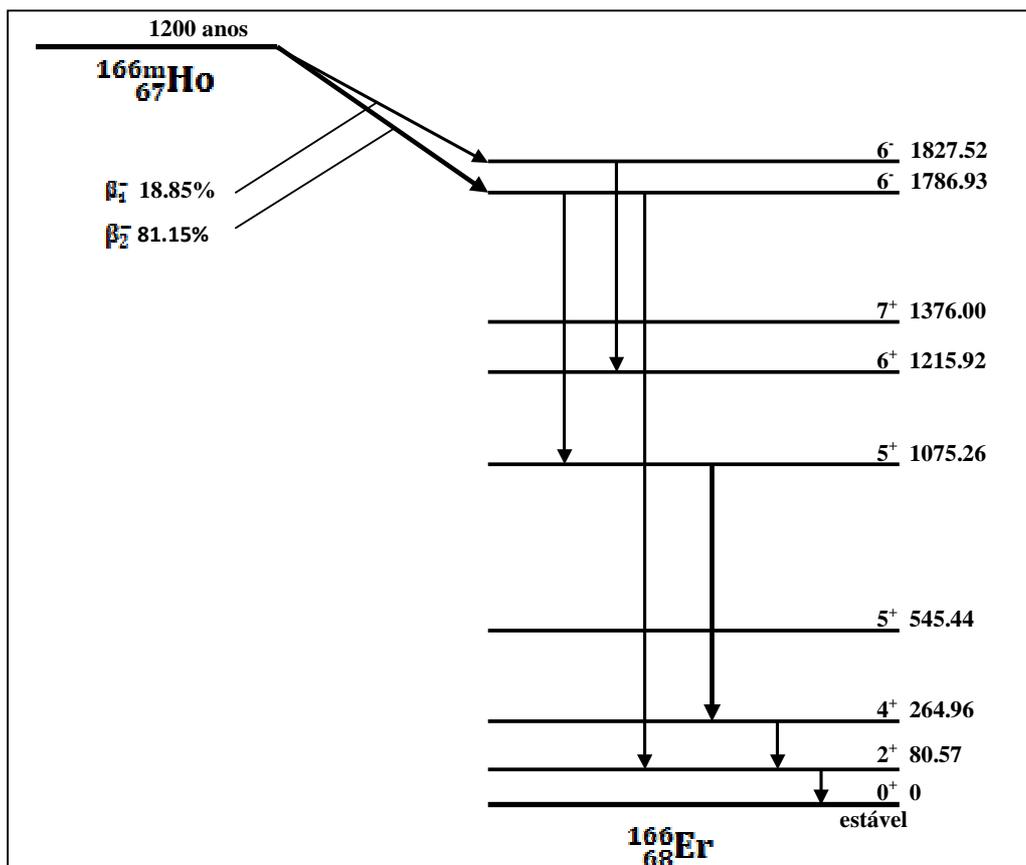


Figura 3.5 – Esquema simplificado de decaimento do  $^{166m}\text{Ho}$ .

O  $^{166m}\text{Ho}$  é um radionuclídeo de decaimento complexo com meia-vida de 1200 anos que emite partículas  $\beta^-$  com até 7 diferentes energias e se transforma no  $^{166}\text{Er}$ , do qual serão emitidos 56 fótons  $\gamma$  de um dos seus 17 níveis de excitação.

Das partículas  $\beta^-$  emitidas pelo  $^{166m}\text{Ho}$  somente duas possuem probabilidades de emissão maiores que 5%, sendo uma de 32,9 keV com 17,2% e a outra de 73,5 keV com 74,8%. No caso dos fótons  $\gamma$  emitidos pelo  $^{166}\text{Er}$  somente nove possuem intensidades absolutas maiores que 5%, sendo os seguintes: um de 830,6 keV com 9,7%, do décimo para o segundo nível; um de 810,3 keV com 57,3%, do oitavo para o segundo nível; um de 752,3 keV com 12,2%, do décimo sétimo para o oitavo nível; um de 711,7 keV com 54,9%, do décimo sexto para o oitavo nível; um de 670,5 keV com 5,3%, do nono para o terceiro nível; um de 571 keV com 5,4%, do décimo sexto para o nono nível; um de 411 keV com 11,4%, do décimo sexto para o décimo nível; um de 280,5 keV com 29,5%, do terceiro para o segundo nível; e um de 184,4 keV com 72,5%, do segundo para o primeiro nível.

Devido ao fato dos fótons  $\gamma$  se apresentarem com variadas intensidades em larga faixa de energia de boa discriminação, o  $^{166m}\text{Ho}$  vem sendo recomendado para ser usado como padrão multi fóton (MOREL et al., 1996; BERNARDES et al., 2002; MOREIRA et al., 2009) para calibração de detectores  $\text{HPGe}$  – Germânio de alta pureza.

As amostras de  $^{243}\text{Am}$  foram preparadas em quatro frascos de vidro com baixo teor de potássio, cada uma com 20 ml do cintilador HISAFE e uma alíquota de solução radioativa com os radionuclídeos  $^{243}\text{Am}$  e  $^{239}\text{Np}$  em equilíbrio. As medições foram realizadas ajustando a discriminação na altura dos pulsos da via  $\gamma$  para selecionar as energias entre 228 a 278 keV do decaimento  $\gamma$  do  $^{239}\text{Pu}$  após a emissão das partículas  $\beta$  do  $^{239}\text{Np}$ , obtendo a concentração de atividade ilustrada na tabela 3.1, usando como referência a data de 28/03/2008. O amplificador da via  $\beta$  funcionou com ganho grosso = 20.

Tabela 3.1 – Padronização das amostras de  $^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}$  usando janela entre 220 a 278 keV.

<i>Identificação</i>	<i>Atividade (Bq/g)</i>	<i>Incerteza no ajuste (%)</i>
$(^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}) - 143$	4.024.046,9	0,07
$(^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}) - 144$	4.004.100,0	0,14
$(^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}) - 145$	3.998.650,0	0,19
$(^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}) - 146$	3.993.230,0	0,14
Média $\pm$ Desvio Padrão	4.005.006,7 $\pm$ 13446,8	0,13 $\pm$ 0,05

O valor final calculado para a concentração de atividade na solução de  $^{243}\text{Am}$ , na janela entre 220 a 278 keV, foi de 2,003 MBq/g  $\pm$  0,37%. A curva com a extrapolação para zero dos fatores de ineficiência  $(1 - \epsilon_{\alpha+\beta}) / \epsilon_{\alpha+\beta}$  desta padronização está ilustrada na figura 3.6 e o correspondente cálculo da incerteza está ilustrado na tabela 3.2.

Tabela 3.2 – Incerteza na padronização do  $^{243}\text{Am}$  na janela entre 220 a 278 keV.

<i>Componentes</i>	<i>Incerteza (%)</i>
Tempo Vivo	0,01
Radiação de Fundo	0,05
Massa	0,05
Ajuste de Curva (Tipo A)	0,14
Estatística de Contagem (Tipo A)	0,33
Meia-Vida	< 0,01
Combinação quadrática	0,37

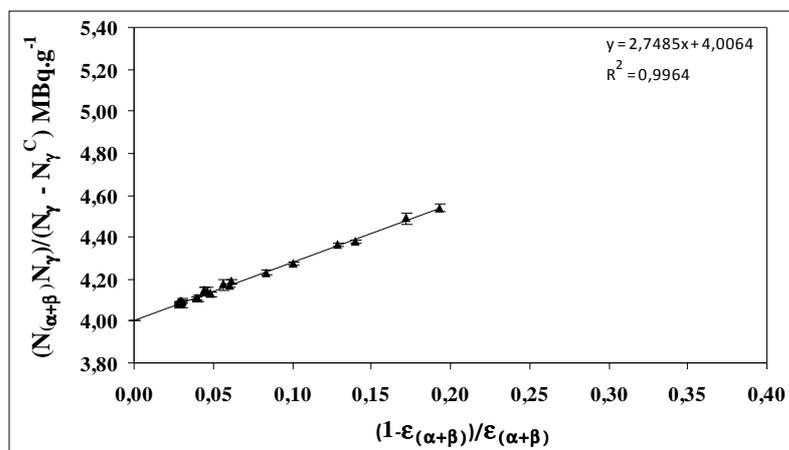


Figura 3.6 – Curva do fator de ineficiência para o  $^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}$  com janela entre 220 a 278 keV.

As amostras de  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  foram preparadas em três frascos de vidro com baixo teor de potássio, cada uma contendo 20 ml do cintilador HISAFE e uma alíquota da solução radioativa. As medições foram realizadas ajustando na via  $\gamma$  a discriminação da altura dos pulsos para selecionar a energia de 184 keV do fóton que sai do segundo nível de excitação (264,96 keV) para o primeiro nível (80,57 keV) no decaimento  $\gamma$  do  $^{166}\text{Er}$  após a emissão das partículas  $\beta$  do  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ . Na tabela 3.3 estão ilustrados os valores obtidos no cálculo da concentração de atividade das amostras, usando a data 28/03/2008 como referência.

Tabela 3.3 – Padronização das amostras de  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  usando a janela para 184 KeV.

<i>Identificação</i>	<i>Atividade (Bq/g)</i>	<i>Incerteza no ajuste (%)</i>
$^{166\text{m}}\text{Ho} - 89$	480.500,3	0,10
$^{166\text{m}}\text{Ho} - 90$	481.938,2	0,13
$^{166\text{m}}\text{Ho} - 91$	482.665,6	0,13
Média	481.701,4 ± 1101,9	0,12 ± 0,02

O valor final calculado para a concentração de atividade na solução de  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ , na janela em 184 keV, foi de 481,801 MBq/g ± 0,26 %. A extrapolação para zero dos fatores de ineficiência  $(1-\epsilon_{\alpha+\beta}) / \epsilon_{\alpha+\beta}$  desta padronização está ilustrada na figura 3.7 e o correspondente cálculo da incerteza está ilustrado na tabela 3.4.

Tabela 3.4 – Incerteza na padronização do  $^{166m}\text{Ho}$ .

<i>Componentes</i>	<i>Incerteza (%)</i>
Tempo Vivo	0,01
Radiação de Fundo	0,03
Massa	0,05
Ajuste de Curva (Tipo A)	0,12
Estatística de Contagem (Tipo A)	0,22
Meia-Vida	< 0,01
Combinação quadrática	0,26

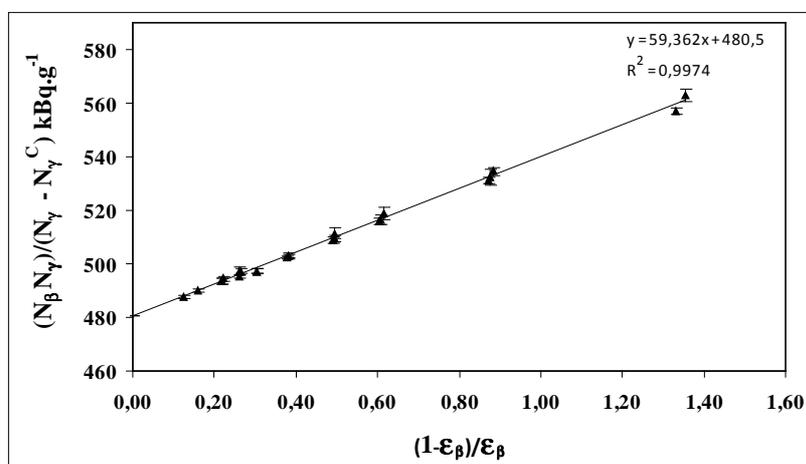


Figura 3.7 – Curva do fator de ineficiência para o  $^{166m}\text{Ho}$  com janela em 184 keV.

### 3.6.2 – Teste de validação do sistema usando a CDCL com o método CIEMAT–NIST

Para as padronizações pelo Método CIEMAT–NIST foram preparadas três amostras de  $^{60}\text{Co}$  e três de  $^{63}\text{Ni}$  em frascos de vidro com baixo teor de potássio, cada um com 15 ml do cintilador HISAFE e uma alíquota da solução radioativa. As medições foram realizadas com as duas *FMTs* na posição de maior aproximação da *CDCL*. O valor da alta tensão aplicado no anodo das duas *FMTs* da *CDCL* foi de 1500 V e o amplificador da via  $\beta$  funcionou com ganho grosso = 200 para as amostras de  $^{60}\text{Co}$  e do traçador  $^3\text{H}$ . A medição

do quench foi realizada pelo cálculo do índice espectral de cada amostra, conhecido em inglês como *SIS* – Spectral Indice of the Sample e calculado pela equação 3.1 (MALONDA, 1995, p. 37), correspondendo ao primeiro momento da distribuição de amplitudes e observado por meio de uma bifurcação da saída do amplificador, enviando um ramo para a contagem digital de pulsos e o outro para o armazenamento do espectro no MCA .

$$SIS = k \frac{\sum_{x=\min}^{\max} xn(x)}{\sum_{x=\min}^{\max} n(x)} \quad (3.1)$$

Em que:  $x$  é o número de um determinado canal do espectro de amplitudes;  $min$  e  $max$  são os canais inferior e superior do espectro considerado;  $n(x)$  é o número contagens correspondentes ao canal  $x$ ; e  $k$  é um fator de normalização correspondente ao *SIS* de uma amostra sem extinção. Como no método CIEMAT–NIST o que importa é a comparação entre a resposta do sistema detecção aos efeitos das amostras cuja atividade se deseja determinar e das amostras preparadas com a solução padrão, então foi considerado na equação 3.1 o valor  $k = 1$ . Os espectros obtidos no *MCA* foram armazenados em até 1024 canais.

Para calcular o *SIS* dos coquetéis radioativos foram inicialmente adotadas duas abordagens; uma na qual o valor foi obtido diretamente do espectro das amostras a serem padronizadas e na outra o valor do *SIS* foi encontrado indiretamente por meio do espectro Compton produzido por uma fonte externa. Foi utilizada uma fonte sólida de  $^{152}\text{Eu}$ , blindada com aço inox, cujo espectro era obtido ao posicioná-la temporariamente sobre a tampa da *CDCL* após a medição de cada coquetel. O procedimento adotado na determinação indireta consistiu na obtenção do espectro na ausência da fonte externa, seguido da medição do espectro composto pela radiação da amostra colocada no interior da *CDCL* e dos fótons externos originários da fonte de  $^{152}\text{Eu}$ . Os espectros considerados na determinação do *SIS* foram obtidos após a subtração das contagens das amostras existentes nos espectros compostos.

Os valores referentes ao cálculo das concentrações de atividade das amostras de  $^{60}\text{Co}$  usando *SIS* obtidos diretamente dos espectros próprios estão ilustradas na tabela 3.5, enquanto que as concentrações de atividade das amostras de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{63}\text{Ni}$  com *SIS* indiretos

encontram-se nas tabelas 3.6 e 3.7. Os valores que se referem à medição e preparação das amostras de  $^3H$ ,  $^{60}Co$  e  $^{63}Ni$  estão detalhados nas tabelas 3.8, 3.9 e 3.10.

A curva com a eficiência experimental do  $^3H$ , construída com os valores de *SIS* obtidos diretamente do espectro da amostra está ilustrada na figura 3.8. Os esquemas de decaimento do  $^{60}Co$  e  $^3H$  estão ilustrados nas figuras 3.9 e 3.10.

Tabela 3.5 – Dados da padronização das amostras de  $^{60}Co$  pelo método CIEMAT–NIST usando a *CDCL* com *FMTs* na máxima aproximação e *SIS* obtido diretamente.

<i>Identificação do coquetel</i>	<i>Quench (SIS)</i>	<i>cpm</i>	<i>Eficiência (%)</i>	<i>Atividade(Bq/mg) em 06/09/2011</i>
$^{60}Co$ -28CL11	561,76	75.285,0	96,94	31,32
$^{60}Co$ -29CL11	556,37	81.238,5	97,22	31,55
$^{60}Co$ -30CL11	573,92	79.854,5	97,25	31,19
Média				31,35

Tabela 3.6 – Dados da padronização das amostras de  $^{60}Co$  pelo método CIEMAT–NIST usando a *CDCL* com *FMTs* na máxima aproximação e *SIS* obtido indiretamente com fonte externa de  $^{152}Eu$ .

<i>Identificação do coquetel</i>	<i>massa (mg) de <math>^{60}Co</math>-07</i>	<i>Quench (SIS)</i>	<i>cpm</i>	<i>Eficiência (%)</i>	<i>Atividade(Bq/mg) em 06/09/2011</i>
$^{60}Co$ -28CL11	41,283	596,13	75.285,0	91,23	33,28
$^{60}Co$ -29CL11	44,416	595,95	81.238,5	91,50	33,33
$^{60}Co$ -30CL11	43,646	587,04	79.854,5	91,52	33,34
Média					33,32

Tabela 3.7 – Dados da padronização das amostras de  $^{63}Ni$  pelo método CIEMAT–NIST com *FMTs* na máxima aproximação da *CDCL* e *SIS* obtido com fonte externa de  $^{152}Eu$ .

<i>Identificação do coquetel</i>	<i>massa (mg) de <math>^{63}Ni</math>-02</i>	<i>Quench (SIS)</i>	<i>cpm</i>	<i>Eficiência (%)</i>	<i>Atividade(Bq/mg) em 01/03/2012</i>
$^{63}Ni$ -43CL11	27,899	549,33	157.983,5	53,02	178,62
$^{63}Ni$ -44CL11	27,659	565,63	158.221,1	53,56	177,11
$^{63}Ni$ -45CL11	27,889	561,68	159.541,4	53,57	178,25
Média					177,99

Tabela 3.8 – Preparação das amostras com a solução padrão de  $^3H - 01$  em 15 ml de HISAFE III.

<i>Coquetel</i>	<i>Nitrometano</i> ( $\mu l$ )	<i>massa (mg)</i> <i>de <math>^3H-01</math></i>	<i>Quench</i> ( <i>SIS</i> )	<i>cpm</i>	<i>Eficiência</i> (%)
$^3H - 258c01$	0	27,280	517,11	33.371,1	26,49
$^3H - 259c01$	5	37,469	488,07	32.045,9	18,52
$^3H - 260c01$	10	35,801	472,95	30.821,1	18,64
$^3H - 261c01$	15	34,980	478,26	30.442,6	18,84
$^3H - 262c01$	20	39,381	474,12	31.012,4	17,05
$^3H - 263c01$	25	36,818	463,43	25.103,3	14,76
$^3H - 264c01$	30	37,599	462,48	23.128,8	13,32
$^3H - 265c01$	35	37,820	452,46	20.967,4	12,00

Tabela 3.9 – Preparação das amostras com a solução do  $^{60}Co - 77$ .

<i>Coquetel</i>	<i>Cintilador</i>	<i>Carreador</i> ( <i>por grama de solução</i> )	$^{60}Co - 77$
$^{60}Co-28CL11$	15 ml de HISAFE III	20ug de Co	41,283 mg
$^{60}Co-29CL11$	15 ml de HISAFE III	20ug de $CoCl_2$	44,416 mg
$^{60}Co-30CL11$	15 ml de HISAFE III	Sem carreador	43,646 mg

Tabela 3.10 – Preparação das amostras com a solução do  $^{63}Ni - 02$ .

<i>Coquetel</i>	<i>Cintilador</i>	$^{63}Ni - 02$
$^{63}Ni-43CL11$	15 ml de HISAFE III	27,899 mg
$^{63}Ni-44CL11$	15 ml de HISAFE III	27,659 mg
$^{63}Ni-45CL11$	15 ml de HISAFE III	27,889 mg

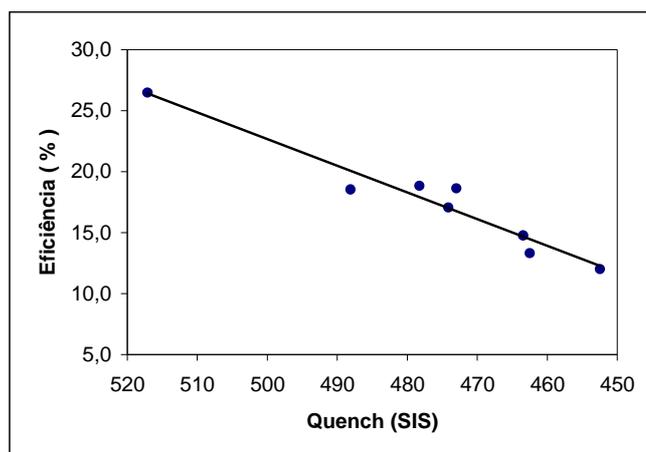


Figura 3.8 – Curva calibração com a solução padrão de  $^3H - 01$ .

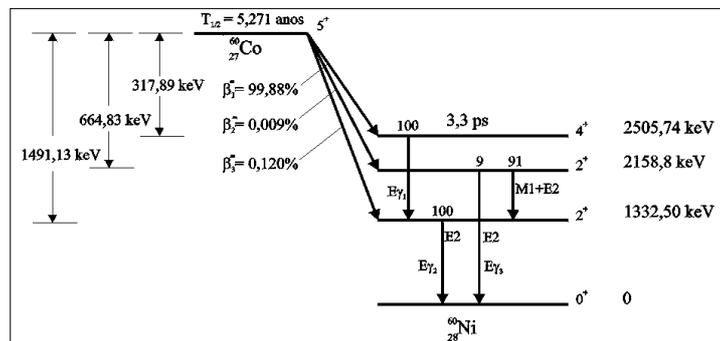


Figura 3.9 – Esquema de decaimento do  $^{60}\text{Co}$  (LAGOUTINE et al.).

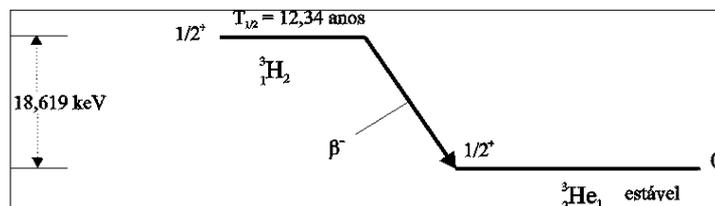


Figura 3.10 – Esquema de decaimento do  $^3\text{H}$  (LAGOUTINE et al.).

Os graus de proibição das partículas  $\beta$  e as informações sobre a solução-mãe utilizada na preparação das amostras de  $^{60}\text{Co}$  são as seguintes: solução-mãe  $^{60}\text{Co}$  – 77; atividade = 31,254 kBq/g em 06/09/2011 (Câmara de Ionização 1); incertezas tipo A = 0,10% , tipo B = 0,19% e total = 0,43% (k = 2); meio químico 20  $\mu\text{g}$  de  $\text{Co}$  / g de  $\text{CoCl}_2$  em  $\text{HCl}$  0,1 N; partícula  $\beta_1$  de 317,32 keV, log ft = 7,51 (permitida); partícula  $\beta_2$  de 664,46 keV , log ft = 14 (2ª proibida); partícula  $\beta_3$  de 1.490,56 keV, log ft = 14,7 (2ª proibida).

Os graus de proibição das partículas  $\beta$  e as informações sobre a solução-mãe utilizada na preparação das amostras de  $^{63}\text{Ni}$  são as seguintes: solução-mãe  $^{63}\text{Ni}$  – 02; atividade = 172,695 kBq/g em 01/03/2012 (CIEMAT–NIST); incertezas tipo A = 0,06% , tipo B = 0,65% e total = 1,3% (k = 2); meio químico  $\text{NiCl}_2$  em  $\text{HCl}$  0,1 N; partícula  $\beta$  de 66,98 keV, log ft = 6,7 (permitida).

O grau de proibição da partícula  $\beta$  do  $^3\text{H}$  e as informações sobre a solução-mãe utilizada na preparação das respectivas amostras são as seguintes: solução-mãe  $^3\text{H}$  – 01; atividade = 76,972 kBq/g em 06/09/2011 (SEMRA); incertezas tipo A = 0,20% , tipo B = 1,80% e

total = 3,62% ( $k = 2$ ); meio químico  $H_2O$ ; partícula  $\beta$  de 18,59 keV,  $\log ft = 3,5$  (super permitida).

### 3.6.3 – Teste de validação do sistema usando os detectores de Germânio e de Iodeto de Sódio

O objetivo principal do teste foi validar o sistema de medições operando com um método de coincidência do tipo fóton-fóton (Iwahara, A. et al., 1990; Pommé S. et al., 2005; Schrader, H., 2006), detectando os fótons  $\gamma$  com um cristal de Iodeto de Sódio ativado com Tálcio –  $NaI(Tl)$ , com 2x2 polegadas e acoplado a uma  $FMT$ , e os fótons X com um detector semi-condutor de Germânio intrínseco com alta pureza –  $HPGe$  com 3 polegadas de diâmetro, acoplado a um pré-amplificador e através de um cilindro metálico especial (dedo frio) a um recipiente cheio de nitrogênio líquido – Dewar. O teste foi realizado com quatro amostras de  $^{133}Ba$ , depositadas sobre uma finíssima película plástica de cloreto de polivinila – VYNS, adequadas para uso com o sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  já existente no SEMRA/LNMRI/IRD, e três amostras de  $^{65}Zn$ , depositadas no centro de um disco de acrílico, dentro de um espaço cilíndrico, sobre uma fita plástica colada no fundo e selada por outra idêntica na face superior.

As concentrações de atividade das soluções-mãe foram determinadas por meio de curvas com a evolução do fator de ineficiência de detecção (BAERG, A. P., 1973) dos fótons que interagiram com o  $HPGe$ . Para absorver parte dos raios X das amostras de  $^{133}Ba$ , com fótons na faixa de 30 keV, foram inseridas entre a amostra e o detector até 9 folhas de alumínio com 0,5 cm de espessura cada; ao passo que para reduzir a eficiência de detecção das amostras de  $^{65}Zn$ , com fótons na faixa de 8 keV, foi utilizada a técnica de afastamento das amostras em relação ao  $HPGe$ , sem alterar a distância relativa ao detector  $\gamma$ .

A figura 3.11 contém o diagrama de blocos da instrumentação utilizada neste teste; sendo que no quadro pontilhado superior estão representados os equipamentos necessários

para operar os detectores  $\text{NaI(Tl)}$  e  $\text{HPGe}$ , enquanto que no inferior estão os equipamentos do sistema de coincidência X- $\gamma$  utilizados neste experimento.

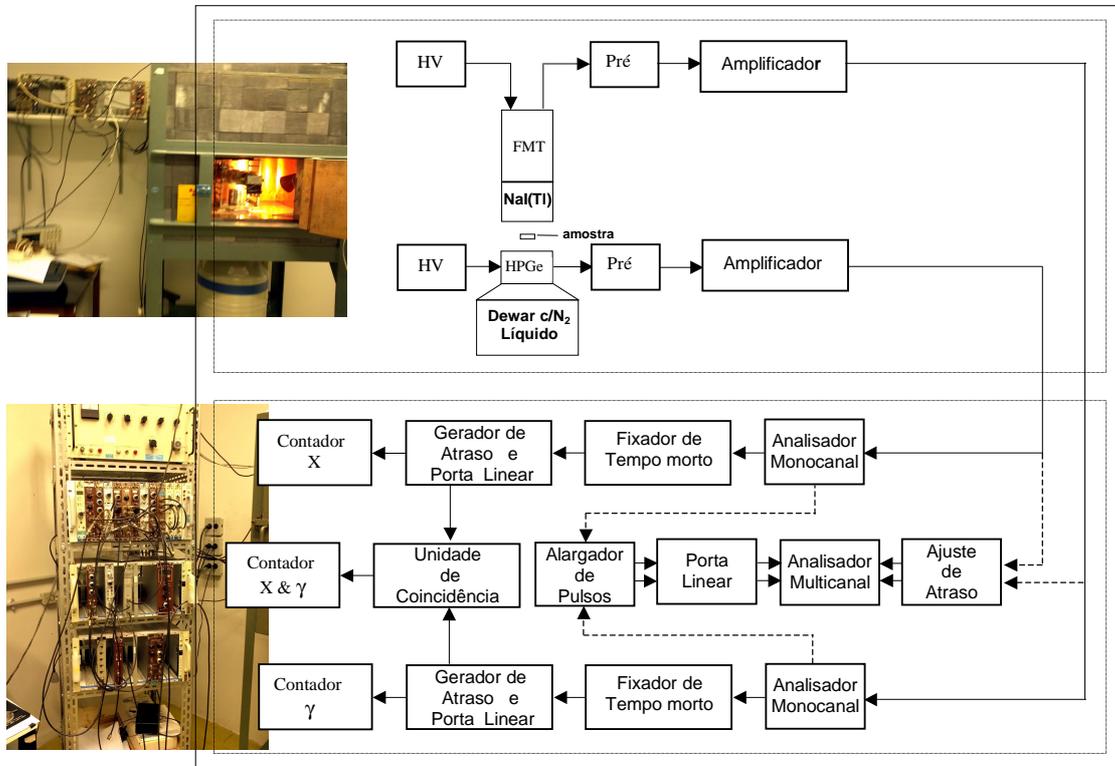


Figura 3.11 – Diagrama de blocos e fotos do sistema de coincidência X- $\gamma$  operando com os detectores  $\text{NaI(Tl)}$  e  $\text{HPGe}$ .

As figuras 3.12 e 3.13 ilustram os esquemas de decaimento simplificado do  $^{133}\text{Ba}$ , e  $^{65}\text{Zn}$ .

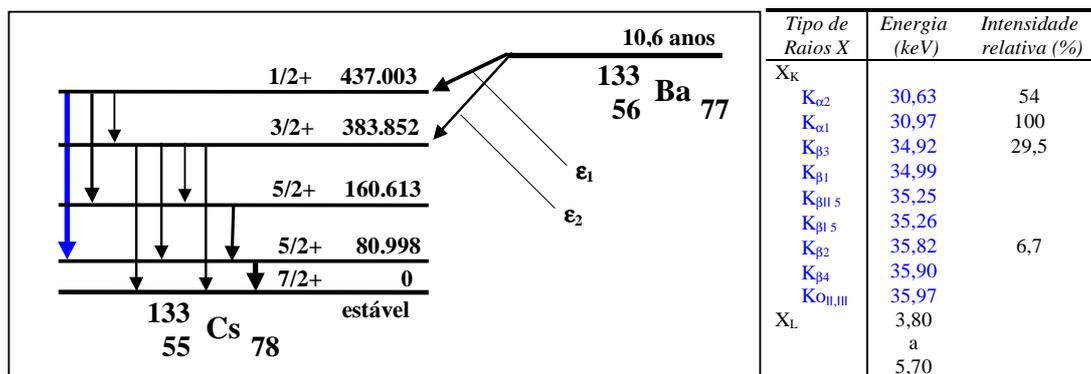


Figura 3.12 – Esquema de Decaimento simplificado e raios X do  $^{133}\text{Ba}$ .

O  $^{133}\text{Ba}$  é um radionuclídeo que apresenta meia-vida relativamente longa e por isso é usado para calibrar detectores de germânio em baixa energia, servindo também como fonte para teste de consistência em ativímetros – os Curriômetros.

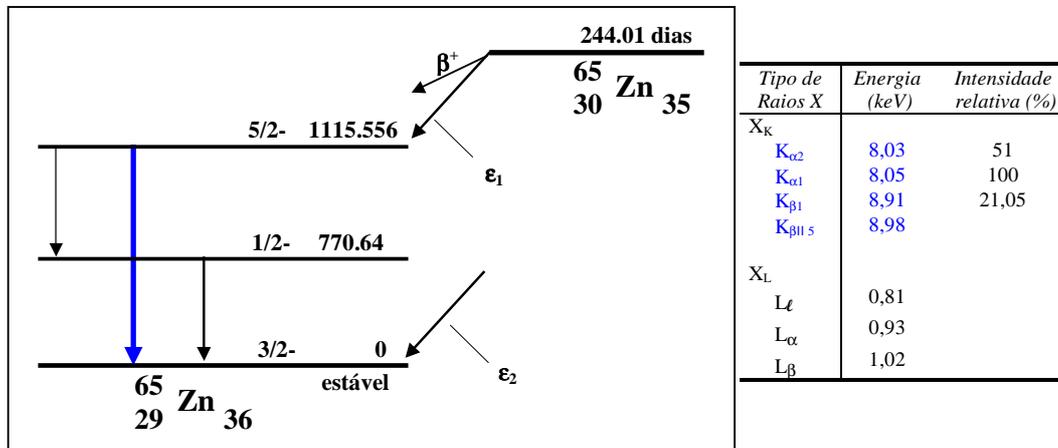


Figura 3.13 – Esquema de Decaimento simplificado e raios X do  $^{65}\text{Zn}$ .

O  $^{65}\text{Zn}$  é usado em medicina nuclear e por ser praticamente um emissor mono gama também serve para calibração de detectores Iodeto de Sódio (SAHAGIA et al, 2004; KARMALITSYN et al, 2004; IWAHARA et al, 2005; HAVELKA et al, 2006).

As medições foram realizadas ajustando-se nos analisadores monocanais a discriminação na altura dos pulsos para selecionarem somente os eventos indicados na cor azul das figuras 3.12 e 3.13. Para o  $^{133}\text{Ba}$  só foram consideradas emissões  $\gamma$  com energia de 356 keV (janela de 2,60 a 3,32 V) e emissões X de 30 a 36 keV (janela de 0,6 a 0,98 V); ao passo que para o  $^{65}\text{Zn}$  só foram consideradas emissões  $\gamma$  com energia de 1115 keV (janela de 7,40 a 10 V) e emissões x de 8 a 9 keV (janela de 0,15 a 0,30 V).

Para a validação da técnica de coincidência  $\gamma$ -X em condições de medição não ideais, não foram confeccionadas amostras com as taxas de contagem adequadas para os eventos selecionados pelas janelas de cada MCA. A preparação das amostras com a solução de  $^{133}\text{Ba} - 47$  atendeu as necessidades do sistema de coincidência  $4\pi\beta$ - $\gamma$ , que detecta mais eventos ( $\gamma$ , X,  $\beta$  e elétrons) do que os considerados com a técnica de coincidência fóton-fóton ( $\gamma$  e X). Para a solução de  $^{65}\text{Zn} - 35$  foram usadas amostras já preparadas durante a implantação no SEMRA/LNMRI/IRD do método de padronização usando a técnica do pico-soma (BERNARDES, 2012).

Os valores das concentrações de atividade aparente e dos fatores de ineficiência  $(1 - \text{eficiência}_{GMX}) / \text{eficiência}_{GMX}$  para cada amostra na data de referência escolhida foram calculados pelo software Beta-Gama do sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  implantado no SEMRA/LNMRI/IRD. As tabelas 3.11 e 3.12 mostram os referidos valores para as amostras de  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{65}\text{Zn}$ .

Tabela 3.11 – Padronização das amostras de  $^{133}\text{Ba}$  usando fótons  $\gamma$  de 356 keV e raios X entre 30 a 36 keV.

<i>Identificação</i>	<i>Atividade (kBq/g) em 17/12/2012</i>	<i><math>\Delta</math> Ativ. referência (%)</i>
$^{133}\text{Ba}_{47}$ – amostra A1	504,56	0,54
$^{133}\text{Ba}_{47}$ – amostra A2	502,28	0,09
$^{133}\text{Ba}_{47}$ – amostra A3	508,19	1,27
$^{133}\text{Ba}_{47}$ – amostra A4	505,05	0,64

Tabela 3.12 – Padronização das amostras de  $^{65}\text{Zn}$  usando fótons  $\gamma$  de 1115 keV e raios X entre 8 a 9 keV.

<i>Identificação</i>	<i>Atividade (kBq/g) em 17/12/2012</i>	<i><math>\Delta</math> Ativ. referência (%)</i>
$^{65}\text{Zn}_{35}$ – amostra 106S12	647,23	0,86
$^{65}\text{Zn}_{35}$ – amostra 107S12	638,54	-0,11
$^{65}\text{Zn}_{35}$ – amostra 108S12	646,96	0,83

As figuras 3.14, 3.15, 3.16 e 3.17 ilustram as curvas com os valores das atividades aparentes em função dos fatores de ineficiência de detecção para cada espessura de alumínio inserida entre o  $\text{HPGe}$  e as amostras preparadas com a solução de  $^{133}\text{Ba} - 47$ . A figura 3.18 mostra a curva correspondente ao valor final da padronização, cujos pontos representam a média entre os valores de cada ponto das curvas individuais.

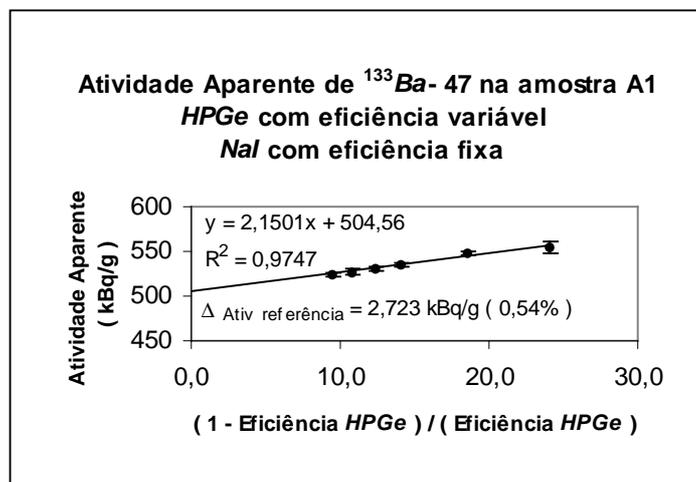


Figura 3.14 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra A1 preparada com a solução de  $^{133}\text{Ba}-47$ .

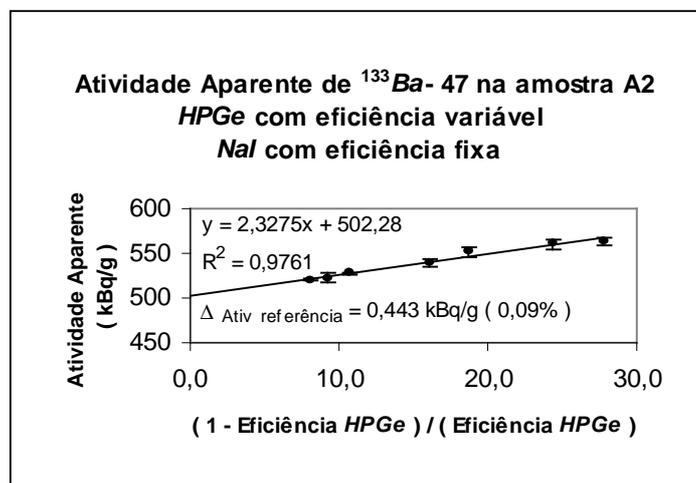


Figura 3.15 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra A2 preparada com a solução de  $^{133}\text{Ba}-47$ .

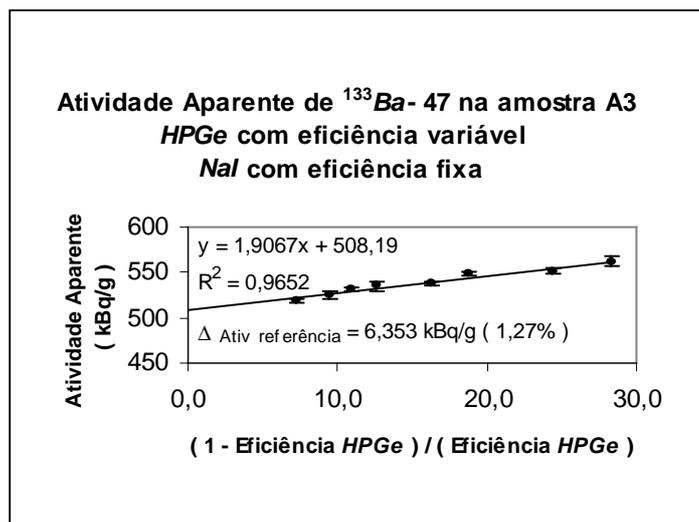


Figura 3.16 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra A3 preparada com a solução de  $^{133}\text{Ba}$  – 47.

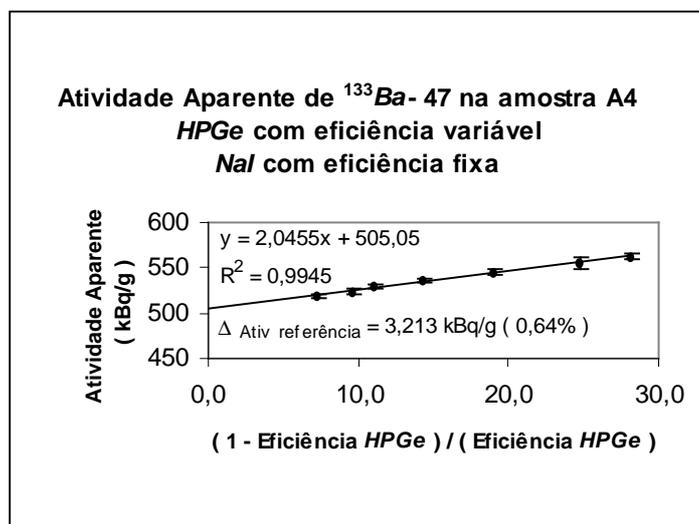


Figura 3.17 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra A4 preparada com a solução de  $^{133}\text{Ba}$  – 47.

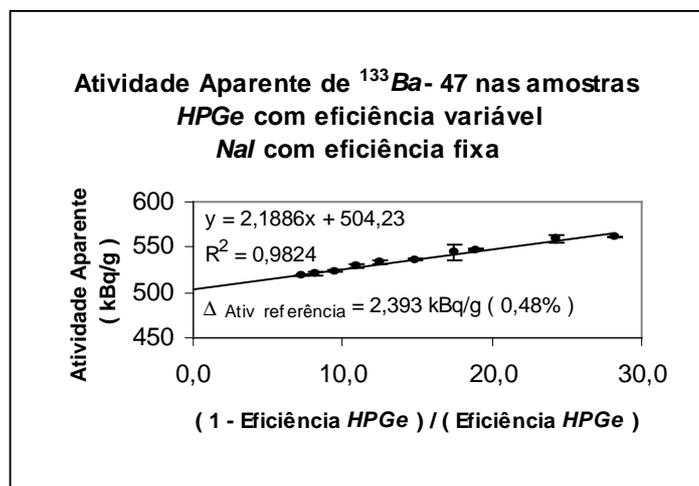


Figura 3.18 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para as amostras preparadas com a solução de  $^{133}\text{Ba}$  – 47.

O valor final calculado para a concentração de atividade na solução de  $^{133}\text{Ba}$  – 47 foi de  $504,23 \text{ kBq/g} \pm 0,34\%$  e o correspondente cálculo da incerteza está ilustrado na tabela 3.13.

Tabela 3.13 – Incerteza na padronização das amostras de  $^{133}\text{Ba}$ .

<i>Componentes</i>	<i>Incerteza (%)</i>
Tempo morto X	$1,75 \times 10^{-4}$
Tempo morto $\gamma$	$2,34 \times 10^{-4}$
Tempo de resolução	$2,10 \times 10^{-2}$
Retardo relativo X- $\gamma$	$1,87 \times 10^{-3}$
Meia Vida	$8,16 \times 10^{-4}$
Radiação de Fundo	$6,18 \times 10^{-2}$
Massa	0,05
Ajuste de Curva (Tipo A)	0,33
Combinação quadrática	0,34

As figuras 3.19, 3.20 e 3.21 ilustram as curvas com os valores das atividades aparentes em função dos fatores de ineficiência de detecção para cada distância entre o *HPGe* e as amostras preparadas com a solução de  $^{65}\text{Zn}$  – 35. A figura 3.22 mostra a curva

correspondente ao valor final da padronização, cujos pontos representam a média entre os valores de cada ponto das curvas individuais.

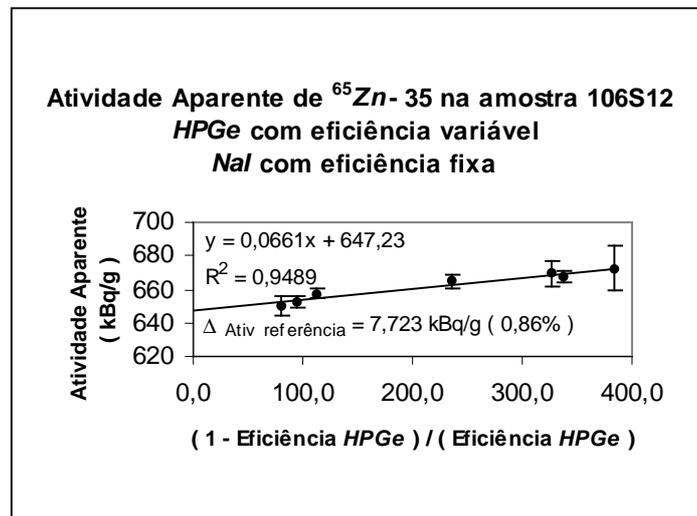


Figura 3.19 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra 106S12 preparada com a solução de  $^{65}\text{Zn} - 35$ .

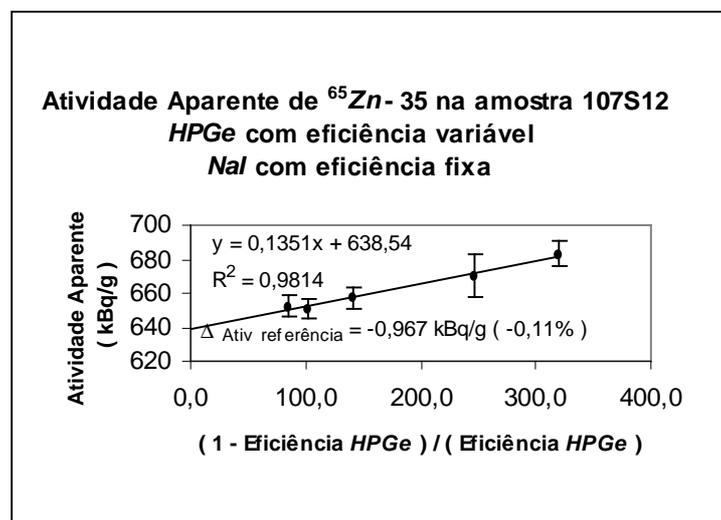


Figura 3.20 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra 107S12 preparada com a solução de  $^{65}\text{Zn} - 35$ .

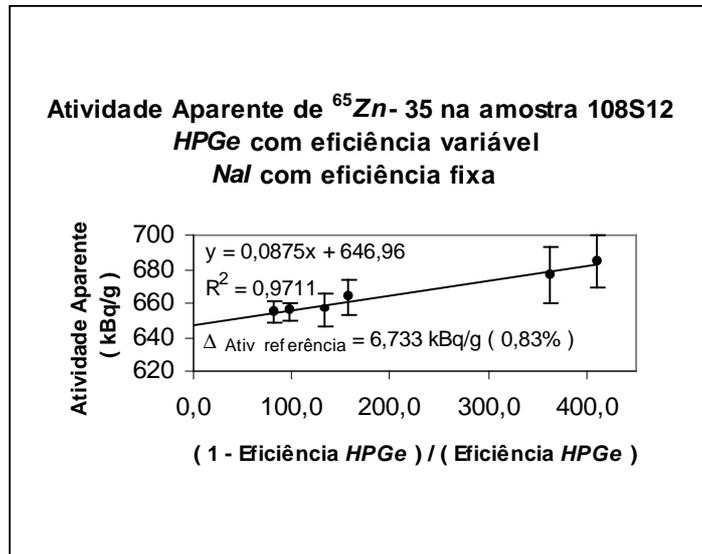


Figura 3.21 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para a amostra 108S12 preparada com a solução de  $^{65}\text{Zn}$  – 35.

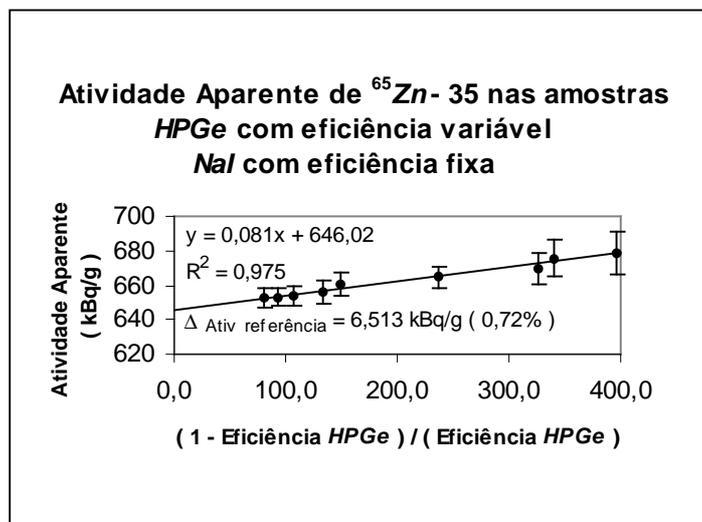


Figura 2.22 – Curva de ineficiência de detecção do *HPGe* para as amostras preparadas com a solução de  $^{65}\text{Zn}$  – 35.

O valor final calculado para a concentração de atividade na solução de  $^{65}\text{Zn} - 35$  foi de 646,02 kBq/g  $\pm$  0,59% e o correspondente cálculo da incerteza está ilustrado na tabela 3.14.

Tabela 3.14 – Incerteza na padronização das amostras de  $^{65}\text{Zn}$ .

<i>Componentes</i>	<i>Incerteza (%)</i>
Tempo morto X	$8,75 \times 10^{-6}$
Tempo morto $\gamma$	$1,23 \times 10^{-5}$
Tempo de resolução	$6,21 \times 10^{-2}$
Retardo relativo X- $\gamma$	$3,35 \times 10^{-4}$
Meia Vida	$4,40 \times 10^{-3}$
Radiação de Fundo	$1,92 \times 10^{-2}$
Massa	0,05
Ajuste de Curva (Tipo A)	$3,77 \times 10^{-3}$
Combinação quadrática	0,59

## Capítulo 4

### RESULTADOS

Este capítulo aborda os resultados das calibrações descritas no item 3.7, obtidas com os novos sistemas de medição desenvolvidos neste trabalho, e os relaciona com as calibrações das mesmas amostras usando os sistemas de medição já implantados no SEMRA/LNMRI/IRD.

As amostras de  $^{243}\text{Am}$  +  $^{239}\text{Np}$  e  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  foram calibradas novamente pelo método de anti-coincidência operando com o sistema de medição já existente, implantado com os módulos eletrônicos franceses MTR2, MI-1, MI-2 e MI-3 da figura 4.1.

As amostras de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{63}\text{Ni}$  foram calibradas novamente pelo método CIEMAT–NIST já existente, implantado com um espectrômetro  $\alpha/\beta$  fabricado pela LKB-WALLAC (LOUREIRO).

As amostras de  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{65}\text{Zn}$  foram calibradas novamente pelo método de coincidência operando com o sistema  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  já existente, implantado com um detector proporcional de geometria  $4\pi$  para partículas e um detector  $\gamma$  para fótons.

#### **4.1 – Comparação usando o método de anti-coincidência com afastamento das *FMTs* e com discriminação eletrônica**

Nesta parte do trabalho foram realizadas padronizações pelo método de anti-coincidência operando com o sistema de detecção ilustrado pelo diagrama de blocos da figura 4.1, cuja variação da eficiência de detecção das partículas é feita por meio de discriminação eletrônica. As medições foram realizadas com as mesmas amostras utilizadas no ambiente experimental que fez uso da *CDCL* variando a eficiência de detecção das partículas por meio do aumento da distância entre as *FMTs*.



Tabela 4.2 – Composição das incertezas para o  $^{243}\text{Am}$ .

<i>Componentes</i>	$^{243}\text{Am}^{(1)(3)}$ (%)	$^{243}\text{Am}^{(1)(4)}$ (%)	$^{243}\text{Am}^{(2)(4)}$ (%)
Tempo Vivo	0,01	0,01	0,01
Radiação de Fundo	0,02	0,05	0,05
Massa	0,05	0,05	0,05
Ajuste de Curva	0,29	0,16	0,14
Estatística de Contagem	0,26	0,30	0,33
Meia-Vida	< 0,01	< 0,01	< 0,01
Efeito Compton	0,20	-	-
Combinação quadrática	0,44	0,35	0,37%

1 – Discriminação eletrônica  
 2 – Afastamento das *FMTs* na *CDCL*  
 3 – Janela em 75 keV  
 4 – Janela entre 220 a 278 keV

A comparação das curvas com os fatores de ineficiência usando discriminação eletrônica e afastamento das *FMTs* para o  $^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}$  está ilustrada na figura 4.2.

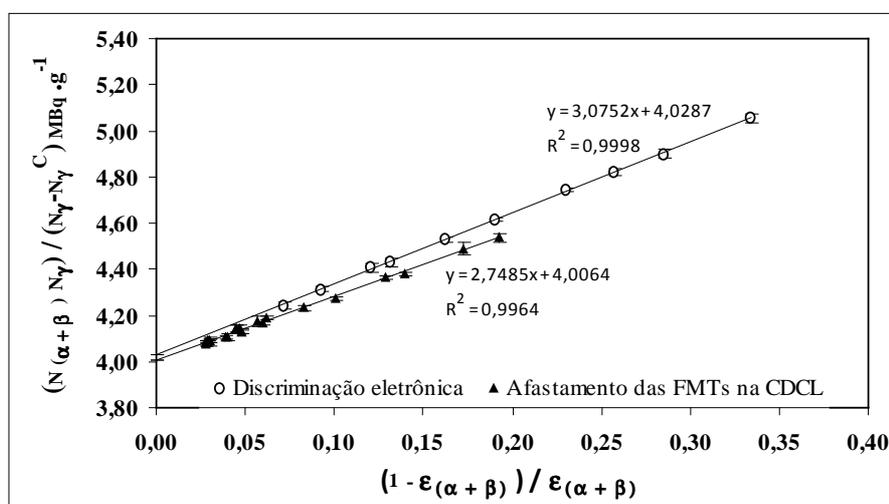


Figura 4.2 – Curvas dos fatores de ineficiência para o  $^{243}\text{Am} + ^{239}\text{Np}$  usando discriminação eletrônica e afastamento das *FMTs* na *CDCL*.

A tabela 4.3 mostra a comparação dos resultados obtidos pelos dois ambientes experimentais usando as amostras de  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ; nesta tabela também foram incluídos os valores obtidos na padronização da mesma solução radioativa pelo sistema da Câmara de

Ionização. A tabela 4.4 ilustra a mesma comparação no cálculo das correspondentes incertezas nas padronizações.

Tabela 4.3 – Resultados das padronizações das amostras de  $^{166m}\text{Ho}$ .

<i>Método de padronização</i>	<i>Atividade (MBq/g)</i>	<i>Incerteza na padronização (%)</i>	$\Delta(\%)$
Anti-coincidência <sup>(1)</sup>	480,460	0,24	0,00
Anti-coincidência <sup>(2)</sup>	481,801	0,26	0,28
Câmara de Ionização	480,044	0,34	0,09

1 – Discriminação eletrônica e janela em 184 keV  
2 – Afastamento das *FMTs* usando a *CDCL* e janela em 184 keV

Tabela 4.4 – Composição das incertezas para o  $^{166m}\text{Ho}$ .

<i>Componentes</i>	$^{166m}\text{Ho}$ <sup>(1)</sup> (%)	$^{166m}\text{Ho}$ <sup>(2)</sup> (%)
Tempo Vivo	0,01	0,01
Radiação de Fundo	0,03	0,03
Massa	0,05	0,05
Ajuste de Curva	0,12	0,12
Estatística de Contagem	0,20	0,22
Meia-Vida	< 0,01	< 0,01
Combinação quadrática	0,24	0,26

1 – Discriminação eletrônica      2 – Afastamento das *FMT* na *CDCL*

A comparação dos ajustes das curvas dos Parâmetros de Eficiência usando discriminação eletrônica e afastamento das *FMTs* para o  $^{166m}\text{Ho}$  está ilustrada na figura 4.3.

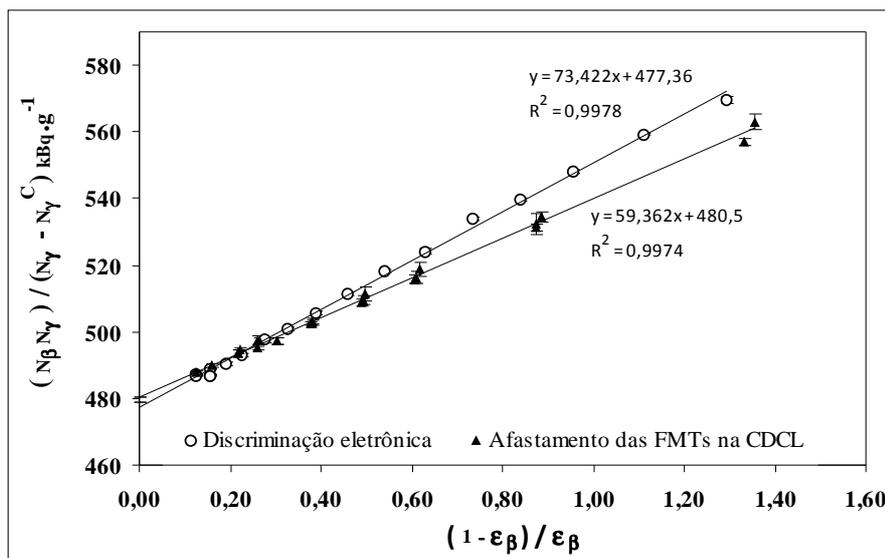


Figura 4.3 – Curvas do Parâmetro de Eficiência para o  $^{166m}\text{Ho}$  usando discriminação eletrônica e afastamento das *FMTs* na *CDCL*.

As diferenças percentuais observadas nas padronizações pelo método de Anti-Coincidência (ver tabelas 4.1 e 4.3), variando a eficiência de detecção com o novo sistema deslocando as *FMTs* no interior da *CDCL* ou com o sistema anteriormente implantado discriminando a amplitude dos pulsos de entrada (por meio dos módulos franceses MTR2, MI-1, MI-2 e MI-3 da figura 4.1), mostraram que o projeto e construção da *CDCL* foram muito bem sucedidos, uma vez que as divergências apresentadas (de 0,40% com amostras de  $^{243}\text{Am}$  e 0,28% com amostras de  $^{166m}\text{Ho}$ ) foram menores do que 1% e este limite é considerado bom pelos laboratórios internacionais de metrologia de radionuclídeos participantes do ICRM.

#### 4.2 – Comparação usando o método CIEMAT–NIST com a *CDCL* e com o espectrômetro $\alpha/\beta$ da LKB-WALLAC.

As mesmas amostras de  $^3\text{H}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{63}\text{Ni}$  utilizadas na *CDCL* também foram calibradas pelo método CIEMAT–NIST operando com o espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC, equipamento comercial utilizado na primeira implantação do método no SEMRA/LNMRI/IRD (Loureiro). As tabelas 4.5 e 4.6 apresentam os valores calculados

para a atividade e incerteza na calibração das amostras das amostras de  $^{60}\text{Co}$  no LKB-WALLAC e na tabela 4.8 encontra-se o cálculo de incerteza das mesmas amostras, correspondente às atividades descritas na tabela 3.6 com a *CDCL*. Nas tabelas 4.7 e 4.9 são apresentadas as comparações entre os resultados das calibrações das amostras preparadas com as soluções de  $^{60}\text{Co} - 77$  e  $^{63}\text{Ni} - 02$  nos dois sistemas de medição, não sendo realizados cálculos de incerteza para calibrações que apresentaram  $\Delta(\%)$  maiores que 2,5%. Também foram incluídos para comparação os valores das calibrações que constam no banco de dados de padrões radioativos do SEMRA/LNMRI/IRD para as mesmas soluções.

Tabela 4.5 – Padronização das amostras de  $^{60}\text{Co}$  pelo método CIEMAT–NIST usando o espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC.

<i>Identificação do coquetel</i>	<i>Quench (SQPE)</i>	<i>cpm</i>	<i>Eficiência (%)</i>	<i>Atividade(Bq/mg) em 02/12/2011</i>
$^{60}\text{Co}$ -28CL11	772,28	70.745,30	93,99	30,64
$^{60}\text{Co}$ -29CL11	782,37	76.313,03	94,24	30,30
$^{60}\text{Co}$ -30CL11	785,90	75.203,27	94,51	30,22
Média				30,38

Tabela 4.6 – Composição das incertezas (k=1) na padronização da solução  $^{60}\text{Co} - 77$  com o espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC.

<i>Componente</i>	<i>Incerteza no item</i>		<i>Incerteza projetada na eficiência ( % )</i>
	<i>( % )</i>	<i>Tipo</i>	
Atividade do $^3\text{H}$ -01	1,81	B	0,089
Extinção química do $^3\text{H}$ -01	0,10	A	0,098
Contagem do $^3\text{H}$ -01	0,48	A	0,023
Gravimetria do $^3\text{H}$ -01	0,05	B	0,003
Extinção química do $^{60}\text{Co}$	0,03	A	0,060
Perda de efic. <i>FMTs</i> (F.M. $^3\text{H}$ )		B	0,332
Parâmetros nucleares		B	0,300
Assimetria das <i>FMTs</i>		B	0,100
Extinção por ionização do $^{60}\text{Co}$		B	0,100
Soma quadrática			0,242
Incerteza na eficiência	0,49	B	0,242
Incerteza na contagem do $^{60}\text{Co}$	0,25	A	0,080
Incerteza na gravimetria do $^{60}\text{Co}$	0,05	B	0,0001
Composição das incertezas na atividade			0,498

Tabela 4.7 – Comparação de resultados das padronizações da solução de  $^{60}\text{Co} - 77$  pelo método CIEMAT–NIST usando a CDCL e o espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC

Calibração do $^{60}\text{Co} - 77$	Método	Atividade (Bq/mg) <sup>1</sup>	Incerteza para $k = 2$ (%)	$\Delta$ (%)
Banco de padrões do SEMRA	Câm. Ioniz.	31,25	0,43	0,00
CDCL c/SIS direto	CIEMAT–NIST	31,35	1,06	0,32
CDCL c/SIS indireto	CIEMAT–NIST	33,32	–	6,62
LKB-WALLAC	CIEMAT–NIST	31,92	1,00	2,25

1 – a data de referência usada nesta comparação é 06/09/2011.

Tabela 4.8 – Composição das incertezas (k=1) na padronização da solução de  $^{60}\text{Co} - 77$  com a CDCL.

Componente	Incerteza no item		Incerteza projetada na eficiência (%)
	(%)	Tipo	
Atividade do $^3\text{H}$ -01	1,81	B	0,072
Extinção química do $^3\text{H}$ -01	0,42	A	0,148
Contagem do $^3\text{H}$ -01	0,16	A	0,028
Gravimetria do $^3\text{H}$ -01	0,05	B	0,002
Extinção química do $^{60}\text{Co}$	0,52	A	0,182
Perda de efic. FMTs (F.M. $^3\text{H}$ )		B	0,332
Parâmetros nucleares		B	0,300
Assimetria das FMTs		B	0,100
Extinção por ionização do $^{60}\text{Co}$		B	0,100
Soma quadrática			0,2809
Incerteza na eficiência	0,53	B	0,2809
Incerteza na contagem do $^{60}\text{Co}$	0,09	A	0,0350
Incerteza na gravimetria do $^{60}\text{Co}$	0,05	B	0,0001
Composição das incertezas na atividade			0,5311

Tabela 4.9 – Comparação de resultados das padronizações da solução de  $^{63}\text{Ni} - 02$  pelo método CIEMAT–NIST usando a CDCL e o equipamento comercial LKB-WALLAC

Calibração do $^{63}\text{Ni} - 02$	Método	Atividade (Bq/mg) <sup>1</sup>	Incerteza para $k = 2$ (%)	$\Delta$ (%)
Banco de padrões do SEMRA	CIEMAT–NIST	172,69	1,3	0,00
CDCL c/SIS indireto	CIEMAT–NIST	177,99	–	3,07
LKB-WALLAC	CIEMAT–NIST	168,47	–	-5,65

1 – a data de referência usada nesta comparação é 01/03/2012.

A diferença de 0,32% observada na padronização das amostras de  $^{60}\text{Co}$ , usando espectros próprios para determinar o *Quench* (SIS direto), mostrou a viabilidade de operação do método CIEMAT–NIST com a *CDCL*, uma vez que a discrepância apresentada foi menor do que 1% (ver tabela 4.7). Já no caso das calibrações que usaram o espectro de uma fonte externa de  $^{152}\text{Eu}$  para calcular o *Quench* (SIS indireto) os resultados produziram discrepâncias bem acima de 1% (ver tabelas 4.7 e 4.9), o que mostra a necessidade de promover melhorias na implantação do método CIEMAT–NIST operando com a *CDCL*.

O comportamento estranho do sistema quando o *Quench* das amostras foi determinado pelo *SIS* indireto pode estar relacionado ao uso de amplificadores lineares, após as saídas das duas *FMTs* internas da *CDCL*, no lugar de amplificadores logarítmicos (não disponíveis no SEMRA/LNMRI/IRD). Os amplificadores lineares produzem pulsos acima de 10 V para eventos de maiores energias, que são descartadas pelos analisadores monocanais – *SCA* e com isso provocam distorções no registro das informações espectrais utilizadas na determinação do *Quench* das amostras.

É importante observar que a implantação anterior do método CIEMAT–NIST faz uso do espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC, que também utiliza uma fonte externa de  $^{152}\text{Eu}$ , determina o *Quench* de forma um pouco diferente, calculado-o por meio do SQPE – Spectral Quench Parameter of the External Standard. Neste equipamento existe um analisador multicanal de 1024 canais que é utilizado para procurar o número do canal que representa uma abrangência de 95% do espectro proveniente da fonte externa, exposta antes de cada medição das amostras, sendo então adotado como valor do SQPE o número do canal encontrado (LOUREIRO, p. 177).

Outro aspecto interessante é que a implantação do método CIEMAT–NIST usando amostras de  $^{60}\text{Co}$  e calculando o *SIS* diretamente produziu discrepância de somente 0,32% com o sistema de medição da *CDCL*, ao passo que ao usar o espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC com as mesmas amostras esta foi de 2,25% (ver tabela 4.7). Provavelmente o melhor desempenho obtido com o novo sistema deveu-se à possibilidade de ajustar

individualmente cada módulo eletrônico, permitindo naturalmente otimizar a resposta global do sistema, ao passo que a inflexibilidade de ajuste do espectrômetro  $\alpha/\beta$  da LKB-WALLAC não permitiu a correção prévia de alguma ineficiência interna apresentada pelo equipamento.

#### 4.3 – Comparação usando os métodos de coincidência $\gamma$ -X e $4\pi\beta$ - $\gamma$

Nesta parte do trabalho foram realizadas padronizações pelo método de coincidência  $4\pi\beta$ - $\gamma$  usando as amostras preparadas com a solução de  $^{133}\text{Ba} - 47$ . Para a solução de  $^{65}\text{Zn} - 35$  foi considerado apenas o valor da padronização existente nos registros do SEMRA/LNMRI/IRD.

A tabela 4.10 mostra a comparação dos resultados obtidos pelos dois ambientes experimentais usando as amostras de  $^{133}\text{Ba} - 47$  e na tabela 4.11 encontra-se a mesma comparação no cálculo das correspondentes incertezas nas padronizações. A figura 4.4 mostra a curva com os valores das atividades aparentes em função dos fatores de ineficiência de detecção  $\beta$  para as amostras da solução de  $^{133}\text{Ba} - 47$  padronizadas com o sistema de coincidência  $4\pi\beta$ - $\gamma$ .

Tabela 4.10 – Resultados das padronizações das amostras de  $^{133}\text{Ba}$  pelo método de coincidência em 17/12/2012.

<i>Sistema de Medição</i>	<i>Atividade (kBq)</i>	<i>Incerteza para <math>k=1</math> (%)</i>	<i><math>\Delta</math>(%)</i>
Registros do SEMRA	501,84	0,25	0
Coincidência $4\pi\beta - \gamma$	523,64	0,75	4,34
Coincidência $\gamma - X$	504,23	0,34	0,48

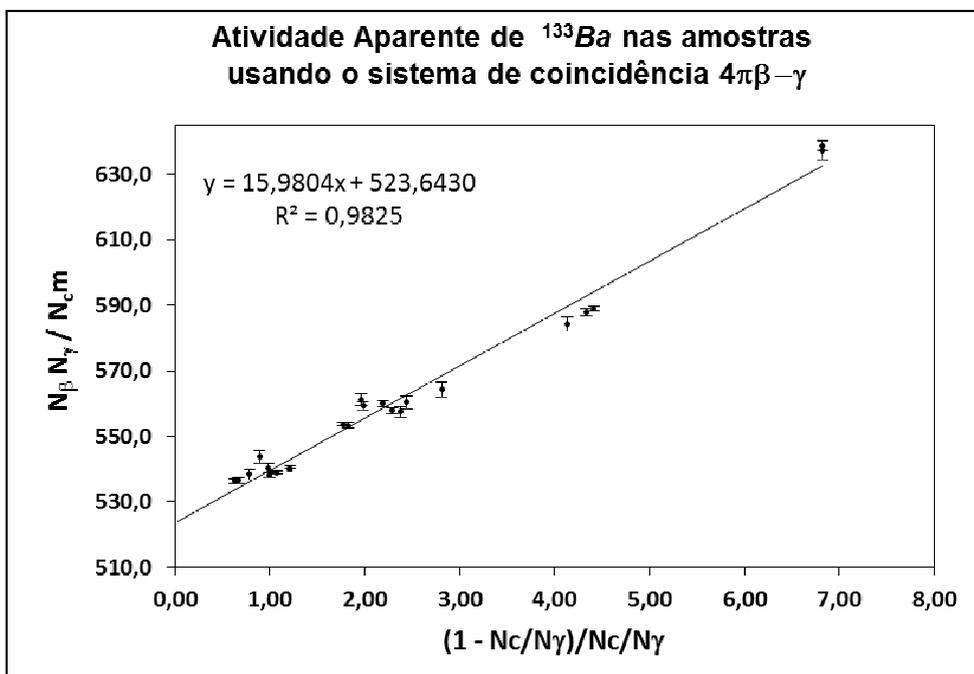


Figura 4.4 – Curva de ineficiência de detecção do  $4\pi\beta$  proporcional usando as amostras da solução de  $^{133}\text{Ba} - 47$  no sistema de coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ .

Tabela 4.11 – Cálculos das incertezas nas padronizações das amostras de  $^{133}\text{Ba}$ .

<i>Componentes</i>	<i>Incerteza para <math>k=1</math> no Sistema <math>4\pi\beta-\gamma</math> (%)</i>	<i>Incerteza para <math>k=1</math> no Sistema <math>X-\gamma</math> (%)</i>
Tempo morto	0,01 ( $\beta$ e $\gamma$ )	$1,75 \times 10^{-4}$ ( $x$ ) $2,34 \times 10^{-4}$ ( $\gamma$ )
Tempo de resolução	0,03	$2,10 \times 10^{-2}$
Retardo relativo $\gamma - X$ ou $\beta - \gamma$	0,19	$1,87 \times 10^{-3}$
Meia Vida	0,03	$8,16 \times 10^{-4}$
Radiação de Fundo	0,36	$6,18 \times 10^{-2}$
Massa	0,05	0,05
Ajuste de Curva (Tipo A)	0,63	0,33
Combinação quadrática	0,75	0,34

A tabela 4.12 mostra a comparação dos resultados obtidos nas padronizações das mesmas amostras de  $^{65}\text{Zn}$  pela câmara de Ionização (constante nos registros do SEMRA) e pelo sistema de coincidências X- $\gamma$ , cujo cálculo de incerteza está detalhado na tabela 3.14,

Tabela 4.12 – Resultados das padronizações das amostras de  $^{65}\text{Zn}$  pelo método de coincidência em 08/03/2013.

<i>Sistema de Medição</i>	<i>Atividade (kBq)</i>	<i>Incerteza para <math>k=1</math> (%)</i>	<i><math>\Delta</math>(%)</i>
Registros do SEMRA	639,51	0,80	0
Coincidência $\gamma - X$	646,02	0,59	0,72

As diferenças percentuais observadas nas padronizações das amostras de  $^{65}\text{Zn}$  (0,72%) e  $^{133}\text{Ba}$  (0,48%) mostraram o sucesso da implantação do Sistema de Coincidência  $\gamma - X$  com os detectores *NaI(Tl)* e *HPGe*, pois as divergências apresentadas (ver tabelas 4.10 e 4.12) ficaram abaixo de 1%.

É importante observar que a tabela 4.10 não mostrou um bom resultado para as amostras de  $^{133}\text{Ba}$  com o Sistema de Coincidência  $4\pi\beta - \gamma$ , ficando bem acima de 1%. Provavelmente isto ocorreu em função de ter sido feito um ajuste impreciso na instrumentação deste sistema, o que é bem crítico para radionuclídeos com esquema de decaimento complexo e quando se utiliza detecção de partículas, como no caso do detector proporcional  $4\pi$ . A imprecisão no ajuste pode gerar incorreções em alguns dos parâmetros necessários para a determinação das atividades aparentes (ver equação 2.55), que após o procedimento de extrapolação de seus valores experimentais levarão à determinação da atividade das amostras.

Outro aspecto interessante é que ao ser usado um Sistema de Coincidência  $\gamma - X$  com um radionuclídeo que apresenta esquema de decaimento complexo não existe a necessidade da introdução de correções no cálculo das atividade aparentes, pois não existem partículas e também, quando se trabalha só com os foto-picos em regiões de energias não sobrepostas, não existem correções devido às coincidências acidentais. Por isso a equação 2.55 usada no

procedimento de extrapolação pode ser substituída pela equação 2.51 e o procedimento de padronização deste tipo de amostras ser bastante simplificado com a disponibilidade de um Sistema de Coincidência  $\gamma$ -X.

## Capítulo 5

### CONCLUSÕES

A execução deste trabalho apresentou bons resultados tanto no que se refere à melhoria introduzida na infraestrutura para experimentos e medições, por meio do projeto e construção da *CDCL*, quanto no aspecto estratégico de possibilitar ao SEMRA/LNMRI/IRD dispor de alternativa para estudar detalhadamente o funcionamento operacional do método CIEMAT–NIST sem depender exclusivamente de equipamentos comerciais, que a despeito da facilidade que apresentam na aquisição automática de dados e troca de amostras, não possibilitam nenhum tipo diferenciado de experimento além daqueles abrangidos nos seus projetos de construção e também criam necessidade de troca sempre que alguns componentes se tornam obsoletos.

Outra melhoria importante obtida foi criar a possibilidade de observação simultânea de um mesmo evento por diferentes métodos com características específicas de detecção e padronização. Com isso poderá ser melhorada a capacidade de análise nas padronizações de soluções radioativas que decaem por captura eletrônica, fenômeno que ainda apresenta para radionuclídeos mais problemáticos discrepâncias acima de 1% nas comparações internacionais de resultados.

Os resultados das padronizações das amostras de  $^{243}\text{Am}$  e  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  pelo método de anti-coincidência com a *CDCL* e sua instrumentação própria, em relação aos valores obtidos pelo sistema de anti-coincidência já implantado no SEMRA/LNMRI/IRD, apresentaram diferenças percentuais de apenas 0,40%, para o  $^{243}\text{Am}$  e 0,28% para o  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ , significando que o novo sistema apresentou resposta muito boa e equivalente ao desempenho do sistema anteriormente implantado, pois ficou dentro do limite de 1% de dispersão aceito internacionalmente. A importância da concordância nos resultados obtidos validou experimentalmente o projeto e a construção da *CDCL*, que representava sem dúvida o maior desafio quanto ao aspecto da tecnologia aplicada na execução do projeto.

Outro aspecto bastante importante do desenvolvimento e validação operacional da *CDCL* foi tornar possível a introdução de uma nova técnica na utilização do método de anti-coincidência, permitindo construir a curva do fator de ineficiência por meio do afastamento das *FMTs* no interior da *CDCL* e com isto não perder a informação contida nos pulsos de baixa energia detectados pelo sistema, o que ocorre quando a variação da eficiência de detecção é feita por meio de discriminação na altura dos pulsos de entrada.

Em relação à implantação do método CIEMAT–NIST proposta neste trabalho, sua execução mostrou resultados bastante promissores, como pôde ser observado pela diferença de apenas 0,32% encontrada no valor da calibração da solução de  $^{60}\text{Co}$  - 77 usando os índices de *Quench* obtidos dos espectros das próprias amostras, em comparação com o valor constante no banco de radionuclídeos do SEMRA/LNMRI/IRD. Porém é importante observar que a referida implantação precisa de melhoria na sua instrumentação, conforme observado pelas discrepâncias acima de 1% encontradas nas comparações com as amostras de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{63}\text{Ni}$  usando os índices de *Quench* obtidos do espectro Compton de uma fonte externa de  $^{152}\text{Eu}$ . Para sanar estas deficiências e introduzir melhorias, serão necessárias as seguintes providências:

- substituir os amplificadores lineares por amplificadores logaritmos, para que não ocorram perdas de informação na saída dos *MCA*s devido as saturações nos pulsos com amplitudes acima de 10 Volts;
- substituir as antigas *FMTs* por outras mais modernas;
- trocar o mecanismo de deslocamento das *FMTs* no interior da *CDCL* por outro com mais facilidade operacional e boa precisão para afastamentos muito pequenos.

Em relação ao sistema de Coincidência  $\gamma$ -X usando os detectores *NaI* e *HPGe* com janela fina de berílio, foi aberta a possibilidade do SEMRA/LNMRI/IRD dispor de um sistema com melhores condições para padronizar amostras com emissão de fótons abaixo de 100 keV. Os resultados das padronizações das amostras de  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{65}\text{Zn}$  com este sistema mostraram-se muito bons, pois em relação aos valores registrados no banco de dados de radionuclídeos apresentaram diferenças de somente 0,48% para as amostras de  $^{133}\text{Ba}$  e 0,72% para para as amostras de  $^{65}\text{Zn}$ .

A importância dos resultados do sistema de Coincidência  $\gamma$ -X concordarem dentro do limite de 1% foi proporcionar ao SEMRA/LNMRI/IRD uma maneira mais simples de padronização com radionuclídeos que apresentam decaimento complexo, bastando para isso apenas selecionar dois eventos correlacionados (um X e um  $\gamma$ ) e padronizar as amostras com precisão e exatidão equivalentes às do sistema de coincidência  $4\pi\beta$ - $\gamma$  tradicional.

Outro aspecto bastante relevante é que a concordância dos resultados na padronização das amostras de  $^{65}\text{Zn}$ , com raios X na faixa de somente 8 keV, mostrou que a técnica implantada foi capaz de obter bons resultados mesmo com fótons de baixa energia.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

BAERG, A. P., 1966, "Measurement of Radioactive Disintegration Rate by Coincidence Method. Metrologia", V.2, No. 166, pp. 23-32.

BAERG, A. P., 1973, "Pressurized proportional counters for coincidence measurements". Nuclear Inst. Met. II2, p. 95 – 99.

BAERG, A. P., 1973, "The Efficiency Extrapolation Method in coincidence counting". Nuclear Inst. Met. II2, p. 143 – 150.

BAERG, A. P., MUNZENMAYER, K., BOWES, G. C., 1976, "Live-Timed Anti-Coincidence Counting with Dead-Time Circuitry". Metrologia 12, pp. 77-80.

BARQUERO, Leonor Rodrigues. 1993, "Preparacion de Muestras". Instituto de Investigacion Basica - Unidad de Metrologia - CIEMAT , october .

BERNARDES, E.M.O., DELGADO, J.U., TAUHATA, L., DA SILVA, C.J., IWAHARA, A., POLEDNA, R. and PASCHOA, A.S., 2002, "<sup>166m</sup>Ho: a multi-gamma standard for the calibration of Ge spectrometers". Appl. Radiat. Isot. 56, 157-161.

BERNARDES, E.M.O., Março de 2012, "Padronização Absoluta de Radionuclídeos Emissores de Pósitrons por Espectrometria Gama com o Método Pico-Soma". Tese de doutorado da Universidade Federal do Rio de Janeiro.

BIRKS, J. B. - Proc. Phys. Soc. London Sect., A64 (1951) 874.

BIRKS, J. B.; BRAGA, C. L.; LUMB, M. D. - Trans. Faraday Soc., 62 (1966) 1830.

BIRKS, J. B., 1964, "The Theory and Practice of Scintillation Counting". Pergamon Press, P.58.

BIRKS, J. B., 1971, "Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting"; Horrocks, D. L.; Peng Eds, C. T. Academic Press - New York - p. 3.

BOTHE and V. BAEYER, ZEITS. F., 1935 - Physik. 95, 415.

BRIANT. J., 1962, "Anticoincidence Counting Method for standardizing radioactive materials". Appl. Radiat. 13, 273 – 276.

BRIANT. J., 1967, "Advantage of Anticoincidence Counting for tandardization of radionuclides emitting delayed gamma". IEEA Symp. Standardization of Radionuclides SM -79/21.

CAMPION, P. J., 1959, "The standardization of radioisotopes by beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors". Int. J. Appl. Radiat. and Isotopes. V. 4, p. 232 – 235.

CAMPION, P. J., TAYLOR J. G. V. and MERRIT, J. S., 1960, "The Efficiency Tracing Technique for Eliminating Selfabsortion Errors in 4bp Counting" – int. J. Appl. Radiat. And Isotopes. V.8, 8.

COX, D. R., ISHAM, V., 1977, "A bivariate point process connected with electronic counters". Proc. Roy. Soc. V.356, p. 149-160.

DA SILVA, CARLOS JOSÉ, Dezembro de 2008, "Implementação de um sistema de anti-coincidência  $4\pi\text{NaI(Tl)}$ -CL com cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível". Tese de doutorado da Universidade Federal do Rio de Janeiro.

DA SILVA, CARLOS J., IWAHARA A, POLEDNA R., BERNARDES E. M. de O., Di PRINZIO M. A. R. R., LOPES RICARDO T., 2008, "Standardization of  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{51}\text{Cr}$  and  $^{55}\text{Fe}$  by live-timed anti-coincidence counting with extending dead time". Appl. Radiat. Isto. 66, pp. 231 –235.

DE CARLOS J. E., GRANADOS, C. E., 1973, "The SAMAR Shared-Dead\_Time Method. A New Approach to Beta-Gamma Coincidence Counting". Nuclear Inst. And Method, 112, pp. 209-212.

DUNWORTH, J. V., 1940 - Rev. Sci. Instr. 11, p. 167.

EVANS, ROBLEY D., 1979, "The Atomic Nucleus". Tata Mcgraw-Hill Inc. THM edition.

GRIGORESQU, L., 1973, "Accuracy of coincidence measurements. Nuclear Instruments And Methods". V.112, p. 151-155.

HAVELKA, M.; AUERBACH, P.; SOCHOROVÁ, J., 2006, "Standardization of  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{65}\text{Zn}$  using a software coincidence counting system". Applied Radiation and Isotopes, V. 64, pp. 1215-1219.

HWANG, H. Y., SUNG, K. S., LEE, J. M., Park, T. S., 2006, "Standardization of Radionuclide By  $\beta(\text{LS})\text{-}\gamma$  Coincidence Counting using the geometry-efficiency variation method". Applied Radiation Isotopes 64, p. 1119-1123.

IWAHARA, AKIRA, Fevereiro de 1979, "Técnica de traçador para medida específica de  $^{63}\text{Ni}$ , utilizando um sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ ". Dissertação de mestrado do Instituto Militar de Engenharia.

IWAHARA, A., MARECHAL, M. H, DA SILVA, C. J., POLEDNA, R., 1990, "Determination of the activity concentration of a  $^{125}\text{I}$  solutions by X-(X, $\gamma$ ) coincidence counting and na efficiency extrapolation curve". Nuclear Inst. And Method, A286, pp. 370-374.

IWAHARA, A. ; SILVA, M. A. L.; FILHO, A. E. C.; BERNARDES, E. M. O.; DELGADO, J. U., 2005, "Determination of disintegration rates and  $\gamma$ -ray emission probabilities of  $^{65}\text{Zn}$  and  $^{241}\text{Am}$ ". Applied Radiation and Isotopes, V. 63, pp. 107-113.

KAPLAN IRVING, 1978, “Física Nuclear”. 2<sup>a</sup> edição, Traduzido por José Goldenberg . Ed. Guanabara dois.

KARMALITSYN, N., I.; SAZONOVA, T. E.; SEPMAN, S. V.; ZANEVSKY, A. V., 2004, “Standardization of <sup>65</sup>Zn”. Applied Radiation and Isotopes, V. 60, pp. 391-395.

KAWADA, Y., 1972, “Extended Applications and Improvement of the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence Method in Standardization of Radionuclides”. ETL report No. 730.

LAGOUTINE, FRÉDÉRIC et al, 1985, “Table de Radionucléides”. Laboratoire Primaire de Rayonnements Ionisants - Commissariat À L'Énergie Atomique - Bureau National de Metrologie.

LOS ARCOS, J. M. et al. 1991, “Dynodic Efficiency of Beta emitters”. Liquid Scintillation counting and Organic Scintillators. Lewis Publishers inc.

LOS ARCOS, JOSE MARIÁ. 1993, “Eficiencia de Recuento de Nucleidos que se Desintegran por Captura Electronica”. Instituto de Investigacion Basica - Unidad de Metrologia - CIEMAT , october.

LOUREIRO, JAMIR DOS SANTOS, Fevereiro de 2000, “Calibração de Radionuclídeos que decaem por emissão Beta ou por Captura Eletrônica pela técnica de Cintilação Líquida”. Dissertação de mestrado do Instituto Militar de Engenharia.

MALONDA, AUGUSTIN GRAU, october 1993, “Modelos de parâmetro libre”. Instituto de Investigacion Basica - Unidad de Metrologia - CIEMAT.

MALONDA, AGUSTIN GRAU, 1995, “Modelos de parametro libre en centelleo liquido”. Editorial CIEMAT.

MOREL, J., ETCHEVERRY, M., PLAGNARD, J., 1996, "Emission probabilities of KX and gamma-rays following  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  decay". Appl. Radiat. Isot., 47, 529-534.

MOREIRA, D.S., KOSKINAS, M.F., DIAS, M.S. and YAMAZAKI, I.M., 2009, "Determination of  $^{198}\text{Au}$  X-rays emission probabilities". Appl. Radiat. Isot. 68, 1566-1570.

PÉROLAT, J. P., 1973, "Some special problems in coincident measurement". Nuclear Instruments And Methods. V.112, p. 179-185.

POMMÉ, S., ALTZITZOGLU, T., AMMEL, V. R., SIBBENS, G., 2005, "Standardisation of  $^{125}\text{I}$  using seven techniques for radioactivity measurement". Nuclear Instruments And Methods. A544, p. 584-592.

RUTHERFORD E, GEIGER H, 1908, "An electrical method of counting the number of  $\alpha$  particles from radioactive substances". Proceedings of the Royal Society (London), Series A, vol. 81, no. 546, pages 141-161.

SAHAGIA, M.; IVAN, C.; GRIGORESCU, E., CAPOGNI, M., DE FELICE, P., FAZIO, A., 2004, "Standardization of  $^{65}\text{Zn}$  by  $4\pi\text{PC}-\gamma$  coincidence counting method with efficiency extrapolation". Applied Radiation and Isotopes, V. 60, pp. 423-427.

SÁNCHEZ, J. F. ORTIZ, 1993, "El proceso de centello. Mecanismos de conversion de la Energia Depositada en Luz". Instituto de Investigacion Basica - Unidad de Metrologia - CIEMAT.

SANTRY, D. C., BOWES, G. C., MUNZENMAYER K., 1987, "Standardization of  $^{67}\text{Ga}$  by live timed anti-coincidence counting with extended dead time". Appl. Radiat. Isot. 38, pp. 787 – 791.

SCHRADER, H., 2006, "Photon–Photon coincidences for activity determination:  $^{125}\text{I}$  and other radionuclides". Appl. Radiat. Isot. 64, pp. 1179 – 1185.

SEMAT, H. , ALBRIGHT, J. R, 1972, "Introduction to Atomic and Nuclear Physics". Holt Rinehart and Winston, Inc., Fifth Edition.

SIEGBAHN, K., 1974, "Alpha, Beta and Gamma Spectroscopy". Amsterdam. North-Holland publishing company. volume I.

SMITH, D. 1978, "Improved correction formulae for coincidence counting". Nuclear Instruments And Methods. V.52, p. 519-523.

TAUHATA, L., ALMEIDA, E. S., 1981, "Física Nuclear". Ed. Guanabara Dois.

TORANO, EDUARDO GARCIA, octubre 1993, "Eficiência de recuento de emissores Beta puros". Instituto de Investigacion Basica - Unidad de Metrologia - CIEMAT ,.

VOLTZ, R., LAUSTRIAT, G., y COCHE, A., C. R. Acad. Sci. Paris, 257, 1473. (1963).

## ANEXO A

### Multipolos Elétricos

#### 1 – O momento do Multipolo Elétrico clássico – q(n)

Considerando uma carga pontual  $+e$  fixa no ponto  $p(x,y,z)$  no referencial da figura A.1, o potencial eletrostático  $\phi$  no ponto  $(0,0,d)$  bem distante da origem, sobre o eixo Z, pode ser

$$\phi = \frac{e}{d_1} = \frac{e}{d} \left(1 - 2 \frac{r}{d} \cos \theta + \frac{r^2}{d^2}\right)^{-1/2}, \quad (\text{A.1})$$

em que  $r = (x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}$ ,  $\cos \theta = z/r$  e pela lei dos cossenos  $d_1 = (d^2 - 2rd \cos \theta + r^2)$ . Expandindo 5.1 em termos  $1/d^n$  obtêm-se

$$\phi = \frac{e}{d} + \frac{er}{d^2} \cos \theta + \frac{er^2}{d^3} \left(\frac{3}{2} \cos^2 \theta - \frac{1}{2}\right) + \frac{er^3}{d^4} \left(\frac{5}{2} \cos^2 \theta - \frac{3}{2} \cos \theta\right) + \dots \quad (\text{A.2})$$

ou, genericamente  $\phi = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{er^n}{d^{n+1}} P_n(\cos \theta)$ , em que  $P_n(\cos \theta)$  é o polinômio de Legendre (ver

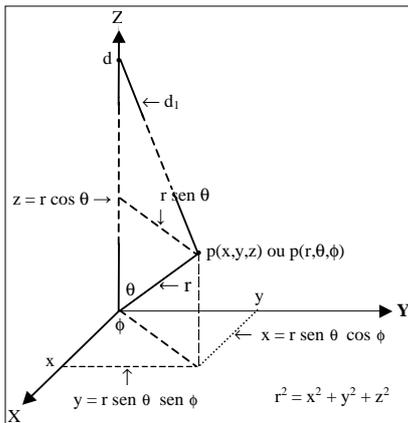


Figura A.1 – Referencial para o potencial  $\phi$  no ponto  $(0,0,d)$ .

quadro a seguir),  $n$  é a ordem do multipolo elétrico sobre o eixo Z e os coeficientes  $1/d^n$  são as ordens de polaridade, representadas como:  $1/d$  para o monopolo, correspondendo ao potencial produzido por uma carga;  $1/d^2$  para o dipolo, produzido por duas cargas com sinais contrários;  $1/d^3$  para o quadrupolo, produzido por quatro cargas combinadas duas a duas com sinais contrários;  $1/d^4$  para o octupolo, produzido por oito cargas combinadas duas a duas com sinais contrários; e assim por diante. Observa-se que mesmo com uma

só carga fora da origem do referencial usado, existirão multipolos elétricos a uma distância  $d \gg r$  que podem ser calculador por A.2; o mesmo acontecerá com um único próton não centralizado em relação a um referencial com origem no centro de massa do núcleo, ocorrendo multipolos elétricos a uma distância  $d \gg r$  com potenciais correspondentes aos momentos do monopolo (coeficiente  $1/d$ ), do dipolo (coeficiente  $1/d^2$ ), do quadrupolo (coeficiente  $1/d^3$ ), do octopolo (coeficiente  $1/d^4$ ), ilustrados na figura A.2, e outros de maior ordem.

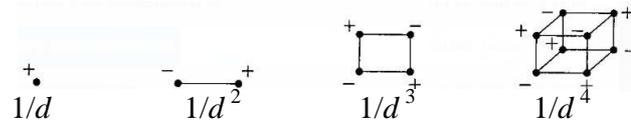


Figura A.2 – Representação de alguns multipolos clássicos.

### O polinômio de Legendre

A aplicação da equação de Laplace a uma função  $V$  representando a energia potencial de uma fonte pontual (por exemplo uma carga ou massa) por meio de  $\nabla^2 V = 0$  pode ser expressa em coordenadas retangulares pela equação  $\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = 0$  ou em coordenadas esféricas usando as variáveis  $x, y$  e  $z$  em função de  $r, \theta$  e  $\phi$ , de acordo com a figura anterior, por meio da equação

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial V}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin^2 \theta \frac{\partial V}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 V}{\partial \phi^2} = 0. \text{ Sabendo-se que } \frac{\partial r}{\partial z} = \frac{\partial (x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}}{\partial z} = \frac{z}{r} \text{ e}$$

considerando uma energia potencial do tipo  $v = \frac{1}{r} = \frac{1}{(x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}}$ , as três derivações sucessivas de  $V$

$$\text{em relação a } z \text{ podem ser calculadas como: } \frac{\partial V}{\partial z} = \frac{\partial(1/r)}{\partial z} = -\frac{1}{r^2} \frac{\partial r}{\partial z} = -\frac{z}{r^3} = -\frac{r \cos \theta}{r^3} = -\frac{\cos \theta}{r^2};$$

$$\frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = \frac{3z^2 - r^2}{r^5} = \frac{3(z^2/r^2) - 1}{r^3} = \frac{3 \cos^2 \theta - 1}{r^3}; \quad \frac{\partial V^3}{\partial z^3} = -\frac{15z^3 - 9zr^2}{r^7} = -\frac{15(z^3/r^3) - 9(z/r)}{r^4} = -\frac{15 \cos^2 \theta - 9 \cos \theta}{r^4}. \text{ Se estas}$$

derivações continuarem é possível perceber que o valor de  $\frac{\partial^n V}{z^n}$  poderá ser descrito por um polinômio

cujos  $n$  termos serão expressos em função de  $\cos \theta / r^{n+1}$ , o que levará ao polinômio de Legendre (o matemático francês Adrien-Marie Legendre – 1752 a 1833) ou aos seus polinômios associados, se as derivações forem relacionadas a  $x$  ou  $y$ . Para representar  $V(x, y, z-h)$  de uma fonte pontual que sofreu uma translação  $h$  em relação ao eixo  $Z$ , uma fórmula que combina todas as derivadas parciais e atende à equação de Laplace pode ser expressa por

$$V(x, y, z-h) = V(x, y, z) - h \frac{\partial V}{\partial z}(x, y, z) + h^2 \frac{1}{2!} \frac{\partial^2 V}{\partial z^2}(x, y, z) + \dots + h^n \frac{(-1)^n}{n!} \frac{\partial^n V}{\partial z^n}(x, y, z) + \dots \text{ Neste caso considera-se}$$

$$V = \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2 + (z-h)^2}} = \frac{1}{\sqrt{r^2 - 2rh \cos \theta + h^2}} \Rightarrow V = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{h^n P_n(\cos \theta)}{r^{n+1}} \text{ para } |h| < r, \text{ que define o polinômio de}$$

Legendre de grau  $n$  e representa a expansão multipolar do potencial devido ao deslocamento de uma fonte pontual em relação ao potencial que apresentaria caso estivesse na origem do referencial.

Observa-se das duas equações anteriores que  $\frac{P_n(\cos \theta)}{r^{n+1}} = \frac{(-1)^n}{n!} \frac{\partial^n (1/r)}{\partial z^n}$ . Os valores de  $n$  representam os

multipolos, sendo  $n = 0$  para o potencial  $v = \frac{1}{(x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}}$  do monopolo com a fonte na origem,  $n = 1$

para o dipolo,  $n = 2$  para o quadrupolo,  $n = 3$  para o octupolo e assim por diante. ( [www.Serc.iisc.ernet.in/~amohanty/SE288/1.pdf](http://www.Serc.iisc.ernet.in/~amohanty/SE288/1.pdf) ).

No caso do núcleo atômico só interessa na prática a determinação do momento do quadrupolo, pois a sua presença significa que as cargas nucleares não se distribuem

esfericamente, conforme prevê o modelo da gota líquida (TAUHATA, L. & ALMEIDA, E. S., p. 65). As demais polaridades não trazem informações estruturais relevantes; como por exemplo na observação experimental do momento do dipolo com auxílio de forte campo magnético externo, que apenas desloca o núcleo de sua posição original sem alterar sua forma, e nas observações a partir do momento de octopolo, por não apresentarem valores significativos (TAUHATA, L. & ALMEIDA, E. S., p. 88).

Ao considerar na equação A.2 apenas o termo correspondente ao momento do quadrupolo ( $1/d^3 = 1/d^{2+1} = q^{(2)}$ ) e o valor de  $\cos \vartheta = z/r$ , extraído da relação trigonométrica no triângulo formado pelo módulo do vetor-posição  $r$  (hipotenusa) e sua projeção no eixo Z (cateto adjacente), obtêm-se

$$q^{(2)} = er^2 \left( \frac{3z^2}{2r^2} - \frac{1}{2} \right) = e \left( r^2 \frac{3z^2}{r^2} - \frac{r^2}{2} \right) \Rightarrow q^{(2)} = \frac{e}{2} (3z^2 - r^2). \quad (\text{A.3})$$

No caso especial de um próton tangente à uma superfície nuclear esférica com raio  $R$ , o momento de quadrupolo sobre o eixo Z, no ponto  $(0,0,R)$ , será  $q^{(2)} = \frac{e}{2} (3R^2 - R^2) = eR^2$ . Se este mesmo próton estiver sobre os eixos X, no ponto  $(R,0,0)$ , ou Y, no ponto  $(0,R,0)$ , o momento do quadrupolo será  $q^{(2)} = \frac{e}{2} [3(0^2) - R^2] = -\frac{eR^2}{2}$ . Por exemplo, o momento do quadrupolo produzido por 6 prótons distribuídos simetricamente aos pares em relação à origem, sobre os eixos X, Y e Z, será

$$q_{(X,Y,Z)}^{(2)} = \left( -\frac{eR^2}{2} - \frac{eR^2}{2} \right)_{x=0} + \left( -\frac{eR^2}{2} - \frac{eR^2}{2} \right)_{y=0} + (eR^2 + eR^2)_{z=0} = -eR^2 - eR^2 + 2eR^2 = 0,$$

sendo encontrado o mesmo valor zero para a distribuição simétrica de qualquer número de prótons em relação ao centro de um núcleo esférico. Portanto, em qualquer átomo a observação experimental de  $q^{(n)} \neq 0$  é um indicativo de que seu núcleo apresenta-se desviado da forma esférica.

## 2 – O Momento do Quadrupolo Nuclear – Q

Na abordagem clássica o momento de quadrupolo corresponde a um vetor  $I^*$  passando pelo centro de massa do conjunto formado pelas cargas analisadas, sendo colinear ao eixo de referência usado. Na abordagem quântica o momento do quadrupolo não considera  $I^*$  diretamente o valor máximo de sua projeção  $m_I$  sobre um eixo que aponta na direção de um campo magnético externo (EVANS, p. 166 - 168). Como  $I = m_{I_{\max}}$  é uma grandeza quântica seu valor só pode variar discretamente ( $I = 0,1,2,3,\dots$ ) e então  $I^* = \sqrt{I(I+1)}$  só pode apontar para determinadas direções.

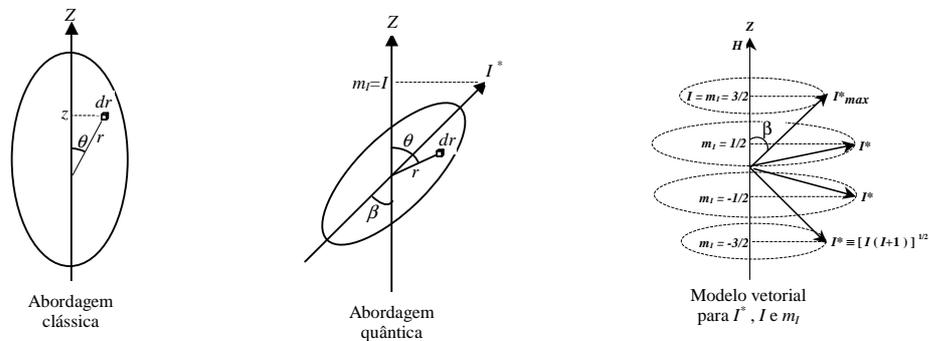


Figura A.3 – Representação simbólica para  $I^* = \sqrt{I(I+1)}$ .

Seu  $|\psi|^2$  a probabilidade de se encontrar o próton em qualquer posição  $(x,y,z)$ , então sua distribuição de carga pode ser considerada contínua e ser representada por uma densidade média  $\rho(x,y,z)$ . Para expressar  $q^{(2)}$  na equação A.3 só na dimensão  $\text{cm}^2$  deve ser inserido um fator  $(1/e)$  e , após eliminar o fator  $(1/2)$  , o momento do quadrupolo nuclear  $Q$  pode ser definido como uma média temporal

$$Q \equiv \frac{1}{e} \int \rho(3z^2 - r^2) dr = \frac{1}{e} \int \rho r^2 [3(z/r)^2 - (r/r)^2] dr = \frac{1}{e} \int \rho r^2 (3\cos^2 \theta - 1) dr, \quad (\text{A.4})$$

tomada sobre  $m_I = I$  enquanto o vetor  $I^*$  realiza um movimento de precessão em torno de  $I$ , que normalmente está direcionado por um campo magnético externo  $H$  e que neste caso coincide com o eixo  $Z$ . Frequentemente  $Q$  é considerado na forma da equação

$$Q = \frac{1}{e} [\rho r^2 (3\cos^2 \theta - 1)]_{\text{médio}} = Z \overline{(3z^2 - r^2)}. \quad (\text{A.5})$$

Para um núcleo com  $Z$  prótons distribuídos uniformemente na forma elipsoidal, tendo seu semi-eixo maior ( $b$ ) paralelo ao eixo de referência e perpendicular a este o semi-eixo menor ( $a$ ), a sua densidade de carga pode ser expressa como

$$\rho = \frac{Ze}{\int dr} = \frac{3Ze}{4\pi a^2 b}$$

e que após ser substituída em A.4 chegar-se ao quadrupolo nuclear, que representa a forma do núcleo, em função do raios  $a$  e  $b$  da elipse como  $Q = \frac{2}{5}Z(b^2 - a^2)$ . Considerando-se um núcleo ligeiramente elipsoidal, com raios  $a$  e  $b$  bem próximos, pode-se definir  $R = \frac{1}{2}(b + a)$  como seu raio médio e o grau de aproximação da forma elíptica por

$$\eta \equiv \frac{b - a}{R} = 2 \frac{b - a}{b + a},$$

obtendo-se o valor do quadrupolo em função destes últimos parâmetros como  $Q = \frac{4}{5}\eta Z R^2$ , em que o valor de  $\eta Z$  representa uma aproximação do número de prótons responsável pela existência do momento de quadrupolo. Da mesma forma, a assimetria na distribuição da

carga no núcleo pode ser determinada por  $\frac{b}{a} \cong 1 + \eta$ . Examinando o modelo vetorial da figura acima, observa-se que  $\cos \beta = \frac{m_l}{\sqrt{I(I+1)}}$  e como  $Q$  em A.4 é efetivamente proporcional a  $3\cos^2 \beta - 1$  (EVANS, p. 167) então  $Q(m_l)$  está relacionado a  $Q(m_l=I)$  por

$$Q(m_l) = \frac{3\cos^2 \beta_{m_l} - 1}{3\cos^2 \beta_I - 1} Q = \frac{[3m_l^2/I(I+1)] - 1}{[3I^2/I(I+1)] - 1} Q = \frac{3m_l^2 - I(I+1)}{I(2I-1)} Q. \quad (\text{A.6})$$

Para  $I = 1/2$  tem-se  $Q(m_l) = \frac{3(1/2)^2 - 1/2(3/2)}{1/2(1-1)} Q = 0$  e para  $I = 0$  tem-se  $m_l = 0$  e

$Q(m_l) = \frac{3(0)^2 - 0(1)}{0(-1)} Q = 0$ , portanto para ser possível a medição de  $Q(m_l)$  é necessário que

o núcleo possua momento angular  $I \geq 1$ .

Medições precisas da estrutura hiperfina possibilitam avaliar o momento do quadrupolo nuclear  $Q$  para o nível fundamental de vários núclídeos e mostram que variam entre  $10^{-26}$  a  $10^{-24}$  cm<sup>2</sup> e têm origem na distribuição não esférica de um ou mais prótons no espaço do núcleo. A figura A.4 mostra uma análise sistematizada dos valores  $Q/(ZR^2)$  por núcleon ímpar para vários elementos com massa  $A$  e  $Z$  prótons, em que o raio nuclear é calculado

por  $R=1,5 \times 10^{-13} A^{1/2}$ . Na curva os círculos correspondem aos momentos do quadrupolo para nuclídios com  $Z$  ímpar e  $N$  par e também  $Z$  ímpar e  $N$  ímpar. Os momentos  $Q$  dos nuclídios com  $Z$  par e  $N$  ímpar foram marcados com triângulos. As linhas contínuas representam regiões com  $Q$  bem estabelecidos ao passo que as linhas pontilhadas representam o contrário. As setas indicam a ocorrência de núcleos bastante estáveis, com excentricidade próxima de zero e sem núcleon celibatário na última camada, que se apresentam fechadas para alguns números “mágicos” de núcleons (2, 8, 20, 28, 40, 50, 82), de acordo com o modelo nuclear de camadas (TAUHATA, L. & ALMEIDA, E. S., p. 118 - 123).

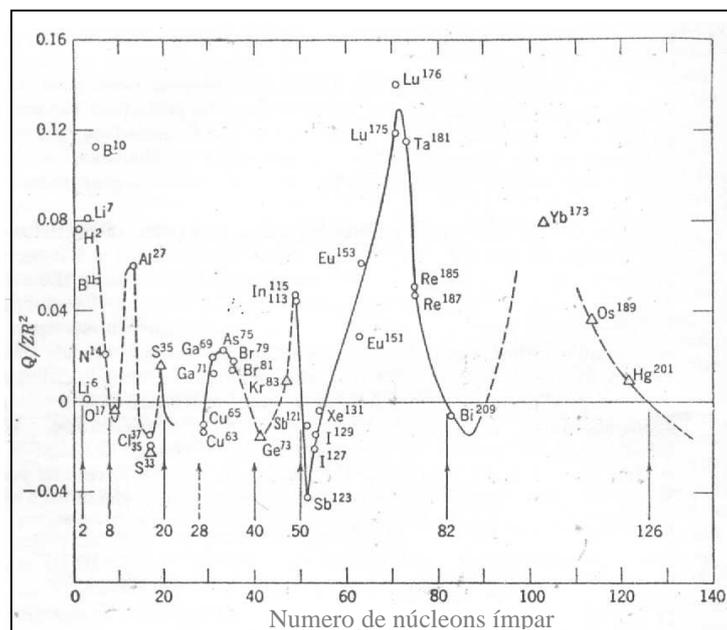


Figura A.4 – Relação experimental  $Q/(ZR^2)$  por núcleon ímpar (Evans, p. 172).

## ANEXO B

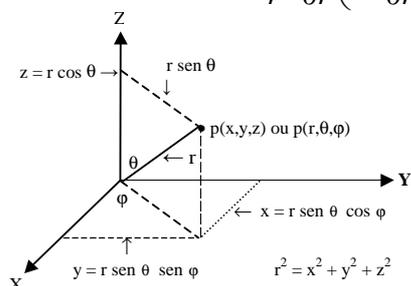
### Harmônicos Esféricos

Harmônicos esféricos são funções harmônicas  $f: U \rightarrow R$  que satisfazem com soluções não triviais em todo  $U$ , um subconjunto aberto de  $R^n$ , a equação de Laplace (o matemático, astrônomo e físico francês Pierre Simon Laplace – 1749 a 1827)

$$\nabla^2 f = \frac{\partial^2 f}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial x_2^2} + \dots + \frac{\partial^2 f}{\partial x_n^2} = 0. \quad (\text{B.1})$$

Expressando em coordenadas esféricas a variação espacial de um conjunto ortogonal de soluções, fazendo as transformações  $x = r \sin \theta$ ,  $y = r \sin \theta \sin \varphi$  e  $z = r \cos \theta$  (ver figura abaixo), obtêm-se então (SEMAT & ALBRIGHT, p. 234)

$$\nabla^2 f = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial f}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin \theta \frac{\partial f}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 f}{\partial \varphi^2} = 0. \quad (\text{B.2})$$



Duas funções são ditas ortogonais se o produto entre uma delas com o conjugado complexo da outra é igual a zero. Matematicamente pode ser expressa no espaço tridimensional como  $\int_{\text{todo espaço}} \psi_1 \psi_2^*(r) (r) d^3 r = 0$  ou, por exemplo, na dimensão  $x$  como  $\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_1^*(x) \psi_2(x) dx = 0$ .

Adotando-se soluções específicas do tipo  $f(r, \theta, \varphi) = R(r) Y(\theta, \varphi)$ , denominamos de harmônico esférico a parte dependente só das componentes angulares e que satisfazem a equação

$$\frac{1}{\sin \theta} \frac{d}{d\theta} \left( \sin \theta \frac{dY(\theta, \varphi)}{d\theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{d^2 Y(\theta, \varphi)}{d\varphi^2} + l(l+1)Y(\theta, \varphi) = 0, \quad (\text{B.3})$$

cuja solução por separação de variáveis, em termos de funções trigonométricas dos polinômios associados de Legendre (ver quadro no anexo A) e expressas por  $Y_l^m(\theta, \varphi) = N e^{im\varphi} P_l^m(\cos \theta)$ , admite soluções periódicas em  $\theta$  e  $\varphi$  dependentes de dois inteiros  $l$  e  $m$ . Nesta equação  $Y_l^m$  é uma função harmônica esférica de grau  $l$  e ordem  $m$ ,

$P_l^m \cos \theta$  é o polinómio de Legendre,  $N$  é uma constante de normalização,  $\theta$  é o ângulo azimutal (a colatitude), e  $\varphi$  é o ângulo longitudinal.

## 1 – Uma abordagem alternativa mais detalhada

No desenvolvimento da teoria de Bohr o único próton do núcleo de hidrogênio foi considerando fixo no centro do sistema de referência enquanto o elétron circulava à sua volta, porém como o campo atrativo do elétron também influencia o próton é mais apropriado analisar o movimento em relação ao centro de massa das duas partículas (o próton de massa  $M$  e o elétron massa  $m$ ), ambas girando em com a mesma velocidade angular em torno deste centro. Com isso é possível posicionar a origem dos eixos de referência XYZ no centro de massa e usar coordenadas esféricas para analisar o movimento

da massa reduzida  $\mu = \frac{mM}{M + m}$  do sistema de partículas (SEMAT & ALBRIGHT, p. 229)

localizada no ponto  $P(r, \theta, \varphi)$ , obtendo-se então a equação de Schrödinger (o físico austríaco Erwin Rudolf Josef Alexander Schrödinger – 1887 a 1961) como

$$\nabla^2 \psi = \frac{2\mu}{\hbar^2} (\varepsilon - V) \psi. \quad (\text{B.4})$$

Usar coordenadas esféricas para analisar um conjunto de  $n$  partículas (de massas  $m_1, m_2, m_3, \dots, m_n$ ) apresenta a vantagem de se poder equacionar o movimento com somente as três derivadas parciais do laplaceano ( $\partial r$ ,  $\partial \theta$  e  $\partial \varphi$ ) e com a massa reduzida ao centro de gravidade  $\mu = \frac{m_1 m_2 m_3 \dots m_n}{m_1 + m_2 + m_3 + \dots + m_n}$  do sistema de partículas, ao passo que se fossem usadas coordenadas cartesianas seria necessário considerar um conjunto de três derivadas parciais ( $\partial x$ ,  $\partial y$  e  $\partial z$ ) para cada partícula, o que complicaria bastante a equação diferencial da função de onda.

Como em B.4 a energia potencial varia só em função de  $r$ , sendo calculada para o átomo de hidrogênio por  $V = -\frac{Ze^2}{r}$ , e o operador  $\nabla^2$  depende de  $r$ ,  $\theta$  e  $\varphi$ , é possível substituir a função de onda pela equação  $\psi(r, \theta, \varphi) = R(r) \Theta(\theta) \Phi(\varphi)$  e após eliminá-la na

equação de Schrödinger expressar o laplaceano como  $\nabla^2 = \frac{2\mu}{\hbar^2}(\varepsilon - V)$  ou explicitamente

em função de  $r$ ,  $\theta$  e  $\varphi$  como (SEMAT & ALBRIGHT, p. 235)

$$\frac{1}{R} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial}{\partial r}) + \frac{1}{\Theta} \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta}) + \frac{1}{\Phi} \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} = \frac{2\mu}{\hbar^2} (\varepsilon - V). \quad (\text{B.5})$$

Ao multiplicar os dois lados por  $r^2 \sin^2 \theta$  a equação anterior não se altera, obtendo-se

$$\frac{\sin^2 \theta}{R} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial}{\partial r}) + \frac{\sin \theta}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta}) + \frac{1}{\Phi} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} = \frac{2\mu}{\hbar^2} r^2 \sin^2 \theta (\varepsilon - V)$$

$$\therefore \frac{\sin^2 \theta}{R} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial}{\partial r}) + \frac{\sin \theta}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta}) - \frac{2\mu}{\hbar^2} r^2 \sin^2 \theta (\varepsilon - V) = -\frac{1}{\Phi} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2}. \quad (\text{B.6})$$

Para satisfazer B.6 é necessário que seus dois lados apresentem um mesmo valor constante e portanto arbitrando-os como  $m_l^2$  é possível seu desmembramento em duas partes; sendo a primeira dependente só de  $\varphi$  e a segunda dependente de  $r$  e  $\theta$ , de acordo as equações

$$\frac{1}{\Phi} \frac{d^2}{d\varphi^2} = -m_l^2 \quad \text{e} \quad (\text{B.7})$$

$$\frac{\sin^2 \theta}{R} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial}{\partial r}) + \frac{\sin \theta}{\Theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta}) - \frac{2\mu}{\hbar^2} r^2 \sin^2 \theta (\varepsilon - V) = m_l^2. \quad (\text{B.8})$$

Separando as variáveis de B.8, colocando de um lado os termos dependentes de  $r$  e do outro os que dependem de  $\theta$ , obtêm-se então

$$\frac{1}{R} \frac{d}{dr} (r^2 \frac{dR}{dr}) + \frac{2\mu}{\hbar^2} (\varepsilon - V) = \frac{m_l^2}{\sin^2 \theta} - \frac{1}{\Theta \sin \theta} \frac{d}{d\theta} (\sin \theta \frac{d\Theta}{d\theta}). \quad (\text{B.9})$$

Para satisfazer B.9 é necessário que seus dois lados apresentem um mesmo valor constante e portanto arbitrando-os agora como  $b = l(l+1)$  é possível seu desmembramento também em duas partes; sendo a primeira dependente de  $r$  e a segunda de  $\theta$ , de acordo as equações

$$\frac{1}{R} \frac{d}{dr} (r^2 \frac{dR}{dr}) + \frac{2\mu}{\hbar^2} (\varepsilon - V) = b \quad (\text{B.10})$$

$$\frac{m_l^2}{\sin^2 \theta} - \frac{1}{\Theta \sin \theta} \frac{d}{d\theta} (\sin \theta \frac{d\Theta}{d\theta}) = b \quad (\text{B.11})$$

Desta forma o conjunto composto pelas equações B.7, B.10 e B.11 é a representação da função  $\psi(r, \theta, \varphi) = R(r) \Theta(\theta) \Phi(\varphi)$  e as soluções das equações específicas para cada variável ( $r$ ,  $\theta$  e  $\varphi$ ) resultam em valores constantes que permitem, após uma escolha adequada, introduzir dois números quânticos; um associado à função  $\Phi(\varphi)$  e o outro associado às funções  $R(r)$  e  $\Theta(\theta)$ .

## 2 – O número quântico introduzido pela função $\Phi(\varphi)$ .

Da equação  $\frac{1}{\Phi} \frac{d^2}{d\varphi^2} = -m_l^2 \Rightarrow \frac{1}{\Phi} \frac{d^2}{d\varphi^2} + m_l^2 = 0 \Rightarrow \varphi = e^{(im_l\varphi)}$ . Como é necessário que

$\psi(r, \theta, \varphi)$  seja contínua, a função  $\Phi(\varphi)$  tem que ser periódica, sem alterar o padrão de oscilação a cada precessão de  $r$  em torno do eixo  $z$ , ou seja com período igual a  $2\pi$  e portanto  $\Phi(\varphi) = \Phi(\varphi + 2\pi) \Rightarrow e^{(im_l\varphi)} = e^{[im_l(\varphi+2\pi)]}$  e como  $e^{(im_l\varphi)} \neq 0$  é possível utilizá-lo como fator de normalização, de modo que

$$\frac{e^{(im_l\varphi)}}{e^{(im_l\varphi)}} = \frac{e^{[im_l(\varphi+2\pi)]}}{e^{(im_l\varphi)}} \Rightarrow 1 = \frac{e^{(im_l\varphi)} e^{(im_l 2\pi)}}{e^{(im_l\varphi)}} \therefore e^{(im_l 2\pi)} = 1.$$

Aplicando em  $e^{(im_l 2\pi)} = 1$  a relação de Euler (o matemático e físico suíço Leonhard Paul Euler – 1707 a 1783) descrita por  $e^{ix} = \cos(x) + i \operatorname{sen}(x)$  obtêm-se  $\cos(2\pi m_l) + i \operatorname{sen}(2\pi m_l) = 1$ , em que a componente real e imaginária são igualdades que devem ser consideradas separadamente, obtendo-se a componente real (a que tem significado físico) pela equação  $\cos(2\pi m_l) = 1$  e chegando-se aos possíveis valores para o número quântico introduzido pela equação  $\Phi(\varphi)$  como  $m_l = 0 \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$

O número quântico  $m_l$  define as posições no plano  $XY$  que o ângulo  $\Phi(\varphi)$  faz com a projeção de  $r = r \operatorname{sen} \theta$  e que por sua vez determina as longitudes permitidas para a ocupação da partícula ou da massa reduzida  $\mu$  na borda do cone que o movimento de precessão do vetor-posição  $r$  descreve em torno do eixo  $z$ . É importante ressaltar que ao desmembrar a equação de Schrödinger em três funções específicas (EVANS, p. 860 - 870) por meio de  $\psi(r, \theta, \varphi) = R(r) \Theta(\theta) \Phi(\varphi)$ , a determinação dos valores possíveis para a

função  $\Phi(\varphi)$  introduz naturalmente o número quântico  $m_l$  sem necessidade de formular nenhuma hipótese, como fez Bohr ao propor o seu modelo usando os conceitos da mecânica clássica.

### 3 – O número quântico introduzido pelas funções $R(r)$ e $\Theta(\theta)$

Considerando a equação B.11, é possível reorganizá-la para assumir a forma da equação diferencial de Legendre dada por  $\frac{d}{dx} \left[ (1-x^2) \frac{d}{dx} P_n(x) \right] + n(n+1)P_n(x) = 0$  e que produz infinitas soluções cujos valores tornam-se infinitos para a maioria delas quando a colatitude (azimute ou ângulo polar) assume os valores  $\theta = 0$  e  $\theta = \pi$ ; porém quando se escolhe a constante  $b = l(l+1)$ , em que  $l \geq 0$  e  $l > |m_l|$ , se obtêm sempre soluções finitas.

Por outro lado ao considerar a equação B.10 observa-se que também existirão infinitas soluções quando  $r \rightarrow \infty$ ; porém quando se utiliza o raio da teoria de Bohr, calculado por

$r = \frac{n^2 \hbar^2}{\mu k Z e^2}$ , em que  $n$  é um número inteiro representando cada orbital quântico permitido, o

valor da energia será  $\varepsilon = -\frac{\mu k^2 z^2 e^4}{2 \hbar^2} \frac{1}{n^2}$  e todas as soluções apresentarão valores finitos.

Uma característica marcante da solução da equação de Schrödinger por separação de variáveis  $r$ ,  $\theta$ , e  $\varphi$  aplicada à teoria de Bohr é o surgimento natural dos números quânticos  $n$ ,  $l$  e  $m_l$  ( Semat & Albright, p. 299), de forma que obtêm-se a seguinte associação de variável com número quântico:

$$r \rightarrow n = 1, 2, 3, 4, \dots$$

$$\theta \rightarrow l = 0, 1, 2, 3, \dots, (n-1)$$

$$\varphi \rightarrow m_l = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots \pm l.$$

## **ANEXO C**

(Artigo publicado na revista Applied Radiation and Isotopes – volume 70, pp. 2056 – 2059)



ELSEVIER

Contents lists available at SciVerse ScienceDirect

## Applied Radiation and Isotopes

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/apradiso](http://www.elsevier.com/locate/apradiso)

# Standardization of $^{166m}\text{Ho}$ and $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$ by live-timed anti-coincidence counting with extending dead time

C.J. da Silva<sup>a,\*</sup>, J.S. Loureiro<sup>a,b</sup>, J.U. Delgado<sup>a</sup>, R. Poledna<sup>a</sup>, D.S. Moreira<sup>a</sup>, A. Iwahara<sup>a</sup>, L. Tauhata<sup>a</sup>, R.L. da Silva<sup>a</sup>, R.T. Lopes<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), Av. Salvador Allende, s/n<sup>o</sup> – Recreio, CEP 22780-160, Rio de Janeiro, Brazil

<sup>b</sup> Laboratório de Instrumentação Nuclear (LIN/PEN/COPPE/UFRJ), Caixa Postal 68590, CEP 21945-970, Rio de Janeiro, Brazil

## ARTICLE INFO

Available online 25 February 2012

## Keywords:

Standardization

Anti-coincidence counting

Extending dead time

## ABSTRACT

The National Laboratory for Metrology of Ionizing Radiation (LNMRI)/Brazil acquired  $^{166m}\text{Ho}$  and  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$  solutions from commercial suppliers in order to realize primary standardization and therefore reducing the associated uncertainties. The method used in the standardization was the live-timed  $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$  anticoincidence counting. The live-timed anticoincidence system is operated since 2006 in LNMRI and is composed of two MTR2 modules donated by Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB)/France. The data acquisition system uses a homemade LabView program and an Excel file for calculus. These systems have been used for primary standardization at LNMRI for many radionuclides and recently took part in the  $^{124}\text{Sb}$  and  $^{177}\text{Lu}$  International Key Comparisons with good performance.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

This work has been realized in order to test the performance of an anticoincidence system in the standardization of radionuclides with complex decay schemes and also compares the extrapolation efficiency curves obtained by electronic discrimination and geometry-efficiency variation. The present paper mainly focuses on reporting the various experimental results such as they are, with no additional theoretical interpretation which is out of its scope.

$^{166m}\text{Ho}$  has a relatively long half-life and undergoes  $\beta^-$  decay to excited states of  $^{166}\text{Er}$ , with the emission of a number of intense and well separated  $\gamma$ -rays over a wide energy range. For this reason, several authors have suggested the use of  $^{166m}\text{Ho}$  as a multi-photon calibration standard for germanium detectors (Morel et al., 1996; Bernardes et al., 2002; Moreira et al., 2009).

$^{243}\text{Am}$  is a very important nuclide as a chemical yield tracer for the radiochemical determination of  $^{241}\text{Am}$  in environmental, food and other samples. Both  $^{241}\text{Am}$  and  $^{237}\text{Np}$  are released in the environment in varying amounts by the nuclear industry making the monitoring on the basis of their long half-lives and of the presence of radioactive daughter nuclides. A solution containing  $^{243}\text{Am}$  in equilibrium with its daughter  $^{239}\text{Np}$  was standardized using the anticoincidence system. This radionuclide could also be used in the future as a standard for germanium detectors, but

more measurements of its gamma ray emission intensities will be necessary.

In order to guarantee the quality of these standards and of their applications, their primary standardization was performed with a live-timed anticoincidence system.

## 2. The $4\pi\alpha,\beta(\text{LS})-\gamma$ anti-coincidence measurement system

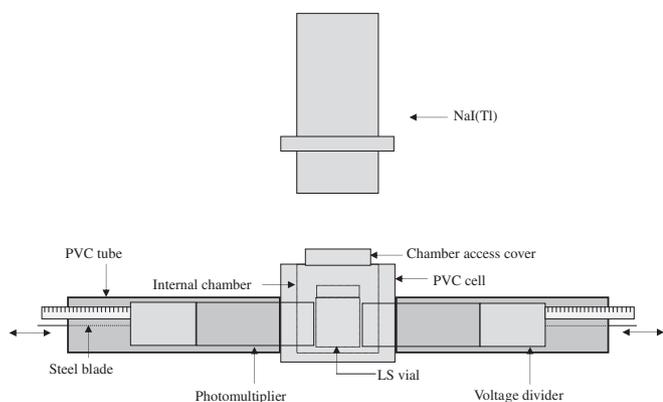
The LNMRI have two  $4\pi\alpha,\beta(\text{LS})-\gamma$  set-ups used for anti-coincidence counting. The first one has two photomultipliers in the beta channel and a 3 in.  $\times$  3 in. NaI(Tl) incorporated in the gamma channel. With this system, the efficiency was changed by electronic discrimination. The second one has two photomultipliers in the beta channel and a 2 in.  $\times$  2 in. NaI(Tl) incorporated in the gamma channel and in this setup the efficiency was changed by geometry variation. Fig. 1 illustrates this method of efficiency variation.

All the counting cells are made of polyethylene painted inside with  $\text{TiO}_3$  in order to reflect light. Live-time measurements with an extending dead time device in the anti-coincidence system were used to make corrections for dead-times (Baerg et al., 1976; Bouchard, 2000; Da Silva et al., 2008). The minimal dead-time is 50  $\mu\text{s}$  for beta and gamma channels.

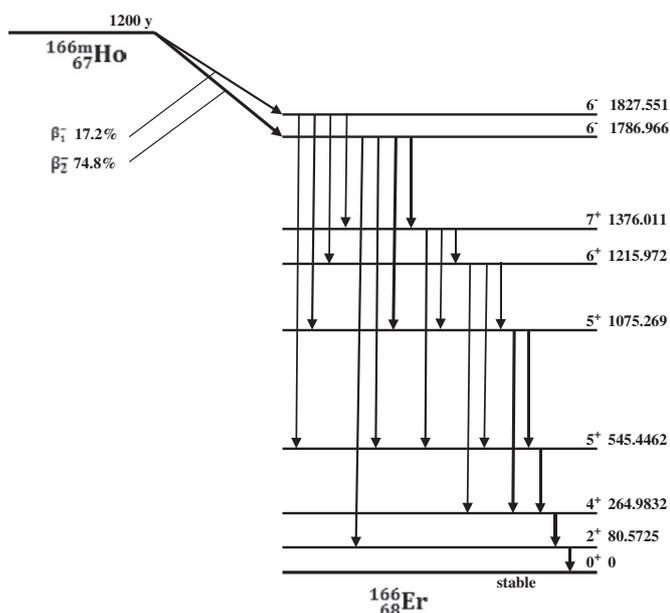
## 3. Source preparation

For both master solutions of  $^{166m}\text{Ho}$  and  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$ , a LNMRI ampoule filled with 2.6 g of solution was prepared for measurement

\* Corresponding author. Tel./fax: +55 21 21732874.  
E-mail address: [Carlos@ird.gov.br](mailto:Carlos@ird.gov.br) (C.J. da Silva).



**Fig. 1.** Illustration of  $4\pi\alpha,\beta(\text{LS})-\gamma$  setup used for anti-coincidence counting with efficiency change by varying the distance of photomultipliers to scintillator solution.



**Fig. 2.** Simplified decay scheme of  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  (Schönfeld and Dersch, 1999). All energies are in keV.

with a well-type ionization chamber and a Ge gamma-spectrometry system.

For the anti-coincidence counting method, drops of the radioactive solution were deposited into a commercial vial filled with 15 ml of HiSafe<sup>®</sup> without carrier for  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ . For this radionuclide six sources were prepared. In the case of  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$ , at first two sources were prepared with HiSafe<sup>®</sup> that had stayed in stock for 4 years, then 2 more sources were prepared with HiSafe<sup>®</sup> and two others with Ultima Gold<sup>™</sup>.

#### 4. Standardization of $^{166\text{m}}\text{Ho}$

The partial decay scheme for  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  is shown in Fig. 2. It decays by  $\beta^-$  emission followed by the emission of over 40  $\gamma$ -rays in the range of 80–1450 keV with a very long half-life of 1200 years (Yuan et al., 2002; Bernardes et al., 2002). Therefore it can be a good standard source for calibration in energy and also efficiency for HPGe systems or a good constancy check solid point source for ionization chamber systems (Hino et al., 2000). In the standardization of this radionuclide, the measurement was

performed selecting a gamma-window around the 184 keV full energy peak, due its high emission probability. The  $\beta$  efficiency was varied by changing the efficiency by electronic discrimination. Each source was measured for 3 cycles and the blank sources for 2 cycles. Each counting cycle consisted of 16 measurements at 10 different threshold levels. The activity concentration was determined by extrapolation and the extrapolation curve was adjusted using a least-squares fitting method. Fig. 3 illustrates one of the extrapolation curves obtained for a  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  sample. Each experimental point of the extrapolation curve represents the mean of 5 measurements for time intervals between 120 and 1800 s.

In another set-up of detectors using the same data acquisition system and the same sources, the distance of phototubes to sources were changed from 0.1 cm to 5 cm with steps of 0.5 cm. Each of the six sources was measured for 1 cycle and the blank sources for 2 cycles. Fig. 3 illustrates one of the extrapolation curves obtained for a  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  sample.

A LNMRI ampoule with 2.6 g of  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  solution was also measured in the ionization chamber system.

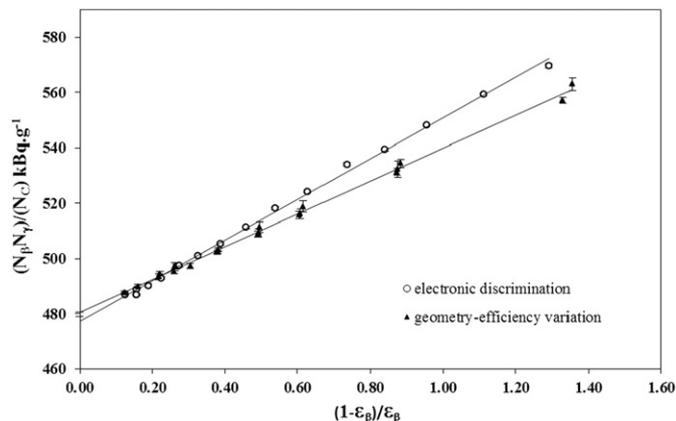
#### 5. Standardization of $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$

The partial decay scheme for  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$  is shown in Fig. 4. In the standardization of  $^{243}\text{Am}$ , two gamma energy windows have been used independently:

- a- The window was set up on the gate of the 75-keV  $\gamma$ -ray following the 5.276-MeV  $\alpha$ -decay from  $^{243}\text{Am}$ . This gate also detected a small contribution from Compton events of the 106-keV  $\gamma$ -ray from the  $^{239}\text{Np}$  decay (Woods et al., 1996) that needed to be corrected for. In order to make this correction, first the fraction (a) of 106 keV  $\gamma$ -rays that is detected in the gate of 75 keV was determined. This evaluation was made with a  $^{57}\text{Co}$  source measured in the same conditions using its 122 keV and 136 keV  $\gamma$ -rays. Then the correction was calculated with the equation below:

$$F_c = \frac{1}{1 + (a\epsilon_{\gamma,106}/\epsilon_{\gamma,75})}$$

In the LS counter the  $\beta$ -decay from  $^{239}\text{Np}$  was also detected, consequently the extrapolation gave the activity of  $2N_0$ , with  $N_0$  the activity of  $^{243}\text{Am}$ . The activity concentration was determined by extrapolation with a procedure similar to that of  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  standardization, however in this case electronic discrimination was done for beta and alpha pulses



**Fig. 3.** Extrapolation functions obtained in the calibration of  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ .

simultaneously. The extrapolation curve was adjusted using a least-squares fitting method. Fig. 5 illustrates an example of the extrapolation curve obtained for a  $^{243}\text{Am}$  sample by electronic discrimination. Due the shape of experimental data, the best choice of adjustment was by a second-degree polynomial.

b- The window was set up on the gate of the 228-keV and 278-keV photopeaks, which follow the  $^{239}\text{Np}$   $\beta^-$  decay (Woods et al., 1996). Each source was measured for 3 cycles and the blank sources for 2 cycles when varying the efficiency by electronic discrimination, and it was measured for 1 cycle when varying the efficiency by changing the source-to-phototubes distance. Fig. 6 illustrates the extrapolation curves obtained for a  $^{243}\text{Am}$  sample, by electronic discrimination and geometry efficiency variation.

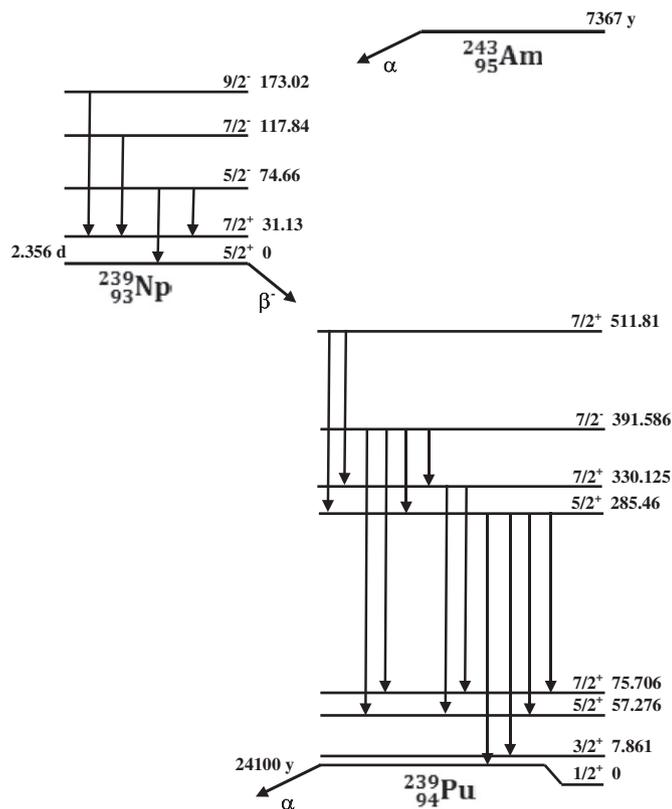


Fig. 4. Simplified decay scheme of  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$  (Bé et al., 2004). All energies are in keV.

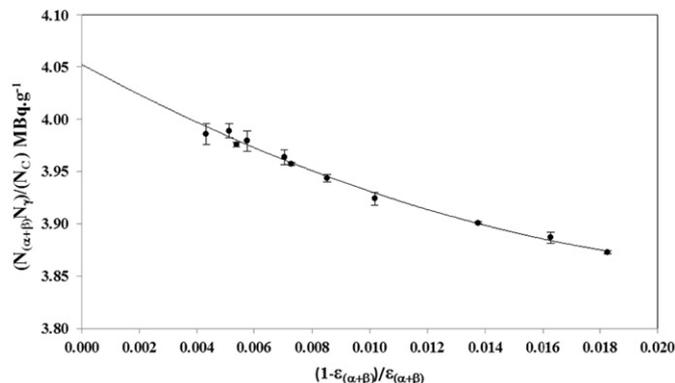


Fig. 5. Extrapolation function obtained for one measured source in the calibration of  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$  with efficiency variation by electronic discrimination with the gamma gate set on 75 keV.

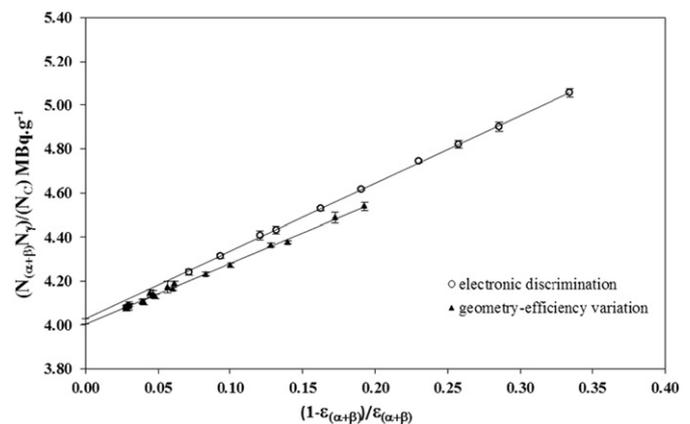


Fig. 6. Extrapolation functions obtained in the calibration of  $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$  with the gate set on the 228-keV and 278-keV photopeaks.

## 6. Ge measurement and impurities

No impurities were found in the  $^{243}\text{Am}$  solution in the measurement made with a high-purity Ge detector.

$^{243}\text{Am}$  is produced by means of the neutron bombardment in the nuclei of  $^{238}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$ .

$^{238}\text{U}$  in its decay emits two  $\gamma$ -rays with energies of 49.55 and 113.5 keV and low emission probabilities of, respectively 0.0697% and 0.0174%. But one of its daughters,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  which was in equilibrium, emits a 1001.6 keV gamma radiation, with good probability of emission and without interfering, so that was used in the identification and possible determination of the impurity.

On the other hand,  $^{239}\text{Pu}$  is a pure alpha emitter, which decays to  $^{235}\text{U}$ . It was necessary to quantify the impurity through the  $\gamma$ -rays of  $^{235}\text{U}$ . In the decay process,  $^{235}\text{U}$  emits  $\gamma$ -rays with different emission intensities; the 185.7 keV  $\gamma$ -ray was the more proper to quantify the impurity. (Bé et al., 2004).

For  $^{235}\text{U}$ , the detection limit was 6.0 Bq/g, whereas for  $^{238}\text{U}$  the value of 463.2 Bq/g was found. All values found were below the detection limit, indicating the absence of radionuclides gamma emitter impurities (Gilmore and Hemingway, 1995).

The activity value obtained is showed in Table 3.

## 7. Results and discussion

The determination of the activity concentration of the solution of  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  showed a reduced uncertainty as a consequence of the very good linearity of extrapolation curves and also counting. The value of the activity concentration is shown in Table 1. The reference date adopted was March 28, 2008 at 0 h UTC. The agreement of 0.28% between both methods adopted for the efficiency variation guarantees the reliability of the results. This can also be confirmed by comparison with ionization-chamber measurement results with an agreement of 0.07% and with traceability to the key comparison APMP.RI(II)-K2.Ho-166m (Michotte et al., 2009). Table 2 summarizes  $^{166\text{m}}\text{Ho}$  measurement uncertainties obtained following the Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (ISO GUM, 1995) when the anti-coincidence counting is applied.

The standardization of  $^{243}\text{Am}$  was carried out by measuring six sources with a gate set around the 75-keV region. Another gate was set on the 228 keV and 278 keV photopeaks. The results are shown in Table 3. For both gates, the determined activity is equal to the sum of  $^{239}\text{Np}$  activity and  $^{243}\text{Am}$  activities, which is equal to  $2N_0$ , due the radioactive equilibrium of the solution.

**Table 1**  
<sup>166m</sup>Ho results.

Measurement method	Activity concentration (kBq g <sup>-1</sup> )	Standard uncertainty (%)	Δ (%)
Anti-coincidence counting <sup>a</sup>	480.460	0.24	0.00
Anti-coincidence counting <sup>b</sup>	481.801	0.26	0.28
Ionization chamber	480.044	0.34	0.09

<sup>a</sup> Electronic discrimination.<sup>b</sup> Geometry-efficiency variation.**Table 2**  
<sup>166m</sup>Ho Uncertainty components (% of activity concentration).

Component due to	<sup>166m</sup> Ho <sup>a</sup>	<sup>166m</sup> Ho <sup>b</sup>
Live time	0.01	0.01
Background	0.03	0.03
Mass	0.05	0.05
Extrapolation	0.12	0.12
Counting statistics	0.20	0.22
Half-life	< 0.01	< 0.01
<b>Combined uncertainty*</b>	<b>0.24</b>	<b>0.26</b>

<sup>a</sup> Electronic discrimination.<sup>b</sup> Geometry-efficiency variation.

\* Components added in quadrature.

**Table 3**  
<sup>243</sup>Am results.

Measurement method	Activity concentration (MBq g <sup>-1</sup> )	Standard Uncertainty (%)	Δ (%)
Anti-coincidence counting <sup>a</sup>	2.006	0.53	0.25
Anti-coincidence counting <sup>b</sup>	2.011	0.35	0.00
Anti-coincidence counting <sup>c</sup>	2.003	0.37	0.40
Gamma spectrometry	2.021	1.2	0.50

<sup>a</sup> Electronic discrimination – gate 75 keV.<sup>b</sup> Electronic discrimination – gate 220 to 278 keV.<sup>c</sup> Geometry-efficiency variation – gate 220 to 278 keV.

Although the beta energy of <sup>239</sup>Np and alpha energy of <sup>243</sup>Am are very different, the results show that there is consistency between the measurements, which means no significant systematic errors, and are valid for the two different and independent methods for efficiency variation. The final result for the anti-coincidence counting is the mean of the results obtained for the six sources; similar results for all cocktails are found, even for the sources that stayed in stock. The agreement between results obtained by both methods adopted for the efficiency variation was about 0.40%. The reference time is September 1, 2006, 0 h. UTC. Table 4 summarizes all <sup>243</sup>Am measurement uncertainties.

**Table 4**  
<sup>243</sup>Am Uncertainty components (% of activity concentration).

Component due to	<sup>243</sup> Am <sup>a</sup>	<sup>243</sup> Am <sup>b</sup>	<sup>243</sup> Am <sup>c</sup>
Live time	0.01	0.01	0.01
Background	0.02	0.05	0.05
Mass	0.05	0.05	0.05
Extrapolation	0.29	0.16	0.14
Counting statistics	0.39	0.30	0.33
Half-life	< 0.01	< 0.01	< 0.01
Compton correction	0.20	–	–
<b>Combined uncertainty*</b>	<b>0.53</b>	<b>0.35</b>	<b>0.37</b>

<sup>a</sup> Electronic discrimination – gate 75 keV.<sup>b</sup> Electronic discrimination – gate 220 to 278 keV.<sup>c</sup> Geometry-efficiency variation – gate 220 to 278 keV.

\* Components added in quadrature.

## 8. Conclusions

With the primary standardization of <sup>243</sup>Am, the first steps in order to transform it in a standard were done. Efforts should be made in order to guarantee that in a near future we can also apply it to gamma spectrometry. The small uncertainties obtained in the standardization of both <sup>166m</sup>Ho and <sup>243</sup>Am stimulates the application of the anticoincidence method for radionuclides with more difficulties in its standardizations. The system for geometry-efficiency variation needs some improvement in order to make it easier the change in distance from source to the phototubes.

## References

- Baerg, A.P., Munzenmayer, K., Bowes, G.C., 1976. Live-timed anti-coincidence counting with extending dead-time circuitry. *Metrologia* 12, 77–80.
- Bé, M.M., Chisté, V., Dulieu, C., Browne, E., Chechev, V., Kuzmenko, N., Helmer, R., Nichols, A., Schönfeld, E., Dersch, R., 2004. BNM – LNHB/CEA – Table de Radionucléides.
- Bernardes, E.M.O., Delgado, J.U., Tauhata, L., Da Silva, C.J., Iwahara, A., Poledna, R., Paschoa, A.S., 2002. <sup>166m</sup>Ho: a multi-gamma standard for the calibration of Ge spectrometers. *Appl. Radiat. Isot.* 56, 157–161.
- Bouchard, J., 2000. MTR2: a discriminator and dead-time module used in counting systems. *Appl. Radiat. Isot.* 52, 441–446.
- Da Silva, C.J., Iwahara, A., Poledna, R., Bernardes, E.M.O., Di Prinzio, M.A.R.R., Delgado, J.U., Lopes Ricardo, T., 2008. Standardization of <sup>241</sup>Am, <sup>124</sup>Sb and <sup>131</sup>I by live-timed anti-coincidence counting with extending dead time. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 886–889.
- Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, 1995. International Organization for Standardization.
- Gilmore, G., Hemingway, J., 1995. *Practical Gamma-ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Chichester.
- Hino, Y., Matui, S., Yamada, T., Takeuchi, N., Onoma, K., Iwamoto, S., Kogure, H., 2000. Absolute measurement of <sup>166m</sup>Ho radioactivity and development of sealed sources for standardization of gamma-ray emitting nuclides. *Appl. Radiat. Isot.* 52, 545–549.
- Michotte, C., Ratel, G., Courte, S., Nedjadi, Y., Bailat, C., Johansson, L., Hino, Y., 2009. Update of the BIPM comparison BIPM.RI(II)-K1.Ho-<sup>166m</sup> activity measurements to include the IRA and the NPL and a re-evaluation of the degrees of equivalence for the APMP.RI(II)-K2.Ho-<sup>166m</sup> comparison. Final Update Report Ho-<sup>166m</sup>.
- Moreira, D.S., Koskinas, M.F., Dias, M.S., Yamazaki, I.M., 2009. Determination of <sup>198</sup>Au X-rays emission probabilities. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 1566–1570.
- Morel, J., Etcheverry, M., Plagnard, J., 1996. Emission probabilities of KX and gamma-rays following <sup>166m</sup>Ho decay. *Appl. Radiat. Isot.* 47, 529–534.
- Schönfeld, E., Dersch, R., 1999. <sup>166m</sup>Ho, BNM – Table de Radionucléides, Commissariat à l'Énergie Atomique.
- Woods, S.A., Woods, D.H., Woods, M.J., Jerome, S.M., Burke, N.E., Bowles, S.E.M., Paton Walsh, C., 1996. Standardisation and measurement of the decay scheme data of <sup>243</sup>Am and <sup>239</sup>Np. *Nucl. Instrum. Methods A* 369, 472–476.
- Yuan, M.-C., Lee, J.-H., Hwang, W.-S., 2002. The absolute counting of <sup>166m</sup>Ho, <sup>58</sup>Co and <sup>88</sup>Y. *Appl. Radiat. Isot.* 56, 429–434.