ATIVIDADE MÍNIMA DETECTÁVEL PARA RADIOISÓTOPOS EMISSORES DE RAIOS GAMA EM AMOSTRAS AQUOSAS

MARCIA INÊS ROCHA SARTI

Orientador: VIRGÍLIO F. NASCIMENTO FILHO

**Dissertação apresentada à Escola Superior de
Agricultura “Luiz de Queiroz”, da Universidade
de São Paulo, para obtenção do título de
Mestre em Energia Nuclear na Agricultura.**

PIRACICABA

Estado de São Paulo - Brasil

Novembro, 1980

Aos meus pais,

Ao Antonio Carlos, Filipe e Milena,

D E D I C O

AGRADECIMENTOS

- Ao *Prof. Virgílio F. Nascimento F^o*, pela orientação, dedicação e estímulo no desenvolvimento deste trabalho,
- ao *Dr. Admar Cervellini*, Diretor do Centro de Energia Nuclear na Agricultura, e ao *Dr. Peter B. Vose*, Diretor do Projeto UNDP/IAEA BRA/78/006, pelos recursos obtidos junto à Comissão Nacional de Energia Nuclear e Agência Internacional de Energia Atômica,
- ao *Centro de Energia Nuclear na Agricultura e à Escola Superior de Agricultura "Luiz de Queiroz"*, pela oportunidade de aperfeiçoamento,
- ao *Plano de Formação e Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - PLANFAP/CNEN e Coordenação do Aperfeiçoamento do Pessoal de Nível Superior - CAPES*, pela concessão de bolsas de estudos,
- ao funcionário *José Osório Bertoli*, pela amizade, ajuda na realização de experimentos e serviços de datilografia, e
- a todos os funcionários do CENA, que de uma forma ou de outra, contribuíram para a execução deste trabalho.

Í N D I C E

	<u>Página</u>
1. RESUMO	1
2. INTRODUÇÃO	3
3. REVISÃO DE LITERATURA	4
4. TEORIA	8
5. MATERIAIS	15
5.1. Instrumentação Nuclear	15
5.2. Radioisótopos	15
5.2.1. Amostras radioativas padronizadas	15
5.2.2. Amostras radioativas não padronizadas	18
5.2.3. Blindagem, beaker Marinelli e tubo de ensaio ..	18
6. MÉTODOS	24
6.1. Eficiência de detecção de radioisótopos em bastão de plástico	24
6.2. Eficiência de detecção de radioisótopos em tubo de vidro	25
6.3. Eficiência de detecção de radioisótopos em beaker Marinelli	28
6.4. Atividade específica mínima detectável	29
7. RESULTADOS E DISCUSSÃO	31
7.1. Eficiência de detecção de radioisótopos em bastão de plástico	31
7.2. Eficiência de detecção de radioisótopos em tubo de vidro	39
7.3. Eficiência de detecção de radioisótopos em beaker Marinelli	56
7.4. Atividade específica mínima detectável	66
8. CONCLUSÕES	85
9. SUMMARY	87
10. LITERATURA CITADA	89

LISTA DE TABELAS

<u>Tabela</u>	<u>Página</u>
1 - Características físicas dos radioisótopos utilizados nas amostras padronizadas (Neu England Nuclear, 1977)	16
2 - Características físicas dos radioisótopos utilizados nas amostras não padronizadas (NASCIMENTO FQ, 1977).	19
3 - Eficiência de detecção (ϵ_b) em função da energia da radiação gama (E_γ), obtidas com amostras padronizadas em bastões plásticos	37
4 - Razões (R) entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade, colocadas no tubo de vidro - 5 ml, e no bastão plástico, em função da energia da radiação gama (E_γ)	43
5 - Eficiência de detecção em função da energia da radiação gama (E_γ), obtida com amostras radioativas de vários volumes em tubos de vidro (ϵ_t) e em beaker Marinelli (ϵ_M)	47
6 - Taxas relativas de contagem em função do volume da amostra em tubos de vidro, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 25 ml. É também apresentado o fator de geometria (f_t) relativo ao tubo de vidro, baseando-se nos volumes de 5 e 25 ml.	52
7 - Eficiência relativa de detecção para camadas de 5 e 250 ml de amostras radioativas colocadas em tubo de vidro e beaker Marinelli, respectivamente, tomando-se como unitária a eficiência de contagem da primeira camada	54
8 - Razão (R') entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade, colocadas no beaker Marinelli - 2500 ml e no tubo de vidro - 5 ml, em função da energia da radiação gama (E_γ)	60

9 - Taxas relativas de contagem em função do volume da amostra em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 2500 ml. É também apresentado o fator de geometria (f_M) relativo ao beaker Marinelli, baseando-se nos volumes de 250 e 2500 ml	62
--	----

LISTA DE FIGURAS

<u>Figura</u>	<u>Página</u>
1 - Amostra colocada no beaker Marinelli em volta do cristal cintilador sólido NaI(Tl). Para cálculo teórico da eficiência total de detecção, a amostra foi dividida nas partes A, B e C	9
2 - Arranjo geométrico mostrando as variáveis nas três partes da amostra contida no beaker Marinelli, em volta do cristal cintilador NaI(Tl)	9
3 - Dimensões externas das fontes radioativas padronizadas e seladas em bastão plástico acrílico, segundo catálogo da New England Nuclear, 1980, p. 128-129	17
4 - Dimensões das fontes radioativas não padronizadas, em bastões de plástico acrílico (dimensões em milímetros).	26
5 - Espectro de energia do ^{57}Co , obtido com a fonte padronizada em bastão de plástico, visualizando-se a área do fotopico utilizada para o cálculo da eficiência de detecção	32
6 - Espectro de energia do ^{133}Ba , obtido com a fonte padronizada em bastão de plástico, visualizando-se a área do fotopico utilizada para o cálculo da eficiência de detecção	33
7 - Espectro de energia do ^{137}Cs , obtido com a fonte padronizada em bastão de plástico, visualizando-se a área do fotopico utilizada para o cálculo da eficiência de detecção	34
8 - Espectro de energia do ^{54}Mn , obtido com a fonte padronizada em bastão de plástico, visualizando-se a área do fotopico utilizada para o cálculo da eficiência de detecção	35

FiguraPágina

9 - Espectro de energia do ^{60}Co , obtido com a fonte padronizada em bastão de plástico, visualizando-se a área do fotopico utilizada para o cálculo da eficiência de detecção	36
10 - Eficiência de detecção (ϵ_D) em função da energia da radiação gama (E_γ), obtida com amostras padronizadas em bastões de plástico acrílico	38
11 - Espectro de energia do ^{203}Hg , obtido com a fonte não padronizada em bastão de plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	40
12 - Espectro de energia do ^{54}Mn , obtido com a fonte não padronizada em bastão de plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli	41
13 - Espectro de energia do ^{65}Zn , obtido com a fonte não padronizada em bastão de plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	42
14 - Razão (R) entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade colocadas no tubo de vidro - 5 ml - e no bastão plástico, em função da energia da radiação gama (E_γ)	44
15 - Eficiência de detecção em função da energia da radiação gama (E_γ), obtidas com amostras radioativas de vários volumes, colocadas em tubos de vidro (ϵ_t) e em beaker Marinelli (ϵ_M)	46
16 - Espectro de energia do ^{131}I , obtido com a fonte não padronizada em bastão de plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	48
17 - Espectro de energia do ^{56}Mn , obtido com a fonte não padronizada em bastão de plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	49

Figura

18 - Espectro de energia do ^{24}Na , obtido com a fonte não padronizada em bastão plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	50
19 - Espectro de energia do ^{42}K , obtido com a fonte não padronizada em bastão plástico, em tubo de vidro - 5 ml - e em beaker Marinelli - 2500 ml	51
20 - Taxa relativa de contagem (média de sete radioisótopos) em função do volume da amostra colocada em tubo de vidro, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 25 ml	53
21 - Eficiência relativa de detecção (ϵ_{ct}) para camadas de 5 ml de amostras radioativas colocadas no tubo de vidro, tomando-se como unitária a eficiência relativa de contagem da camada de 0 a 5 ml	55
22 - Fator de geometria (f_t) ou eficiência relativa de detecção (ϵ_{Rt}) em função do volume da amostra (V) colocada em tubo de vidro tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com 5 ml	57
23 - Eficiência de detecção para alguns radioisótopos em tubo de vidro (ϵ_{tV}) em função do volume da amostra (V) ..	58
24 - Razão (R') entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade colocadas em beaker Marinelli - 2500 ml e em tubos de vidro - 5 ml, em função da energia da radiação gama (E_γ)	61
25 - Taxa relativa de contagem (média de sete radioisótopos) em função do volume da amostra colocada em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com a amostra de 2500 ml	63
26 - Eficiência relativa de detecção (ϵ_{cM}) para camadas de 250 ml de amostras radioativas colocadas em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a eficiência relativa de contagem da camada de 0 a 250 ml	65

- 27 - Fator de geometria (f_M) e eficiência relativa de detecção em função do volume da amostra colocada em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com 2500 ml (ϵ_{RM}). É dada também a eficiência relativa de detecção tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com amostra de 250 ml (ϵ'_{RM}) ... 67
- 28 - Eficiência de detecção para alguns radioisótopos em beaker Marinelli (ϵ_{MY}) em função do volume da amostra . 68
- 29 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{203}Hg , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 69
- 30 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{131}I , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 500 e 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 70
- 31 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{54}Mn , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro e de 500 e 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 71
- 32 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{65}Zn , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1% para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 72

- 33 - Atividade específica mínima (a , dpm/ml) para ^{24}Na , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 73

- 34 - Atividade específica mínima (a , dpm/ml) para ^{42}K , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 74

- 35 - Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) para ^{203}Hg em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 75

- 36 - Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) para ^{131}I em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 76

- 37 - Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) para ^{54}Mn em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos 77

- 38 - Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) para ^{65}Zn em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de

	2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da <u>ra</u> diação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos	78
39 -	Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) pa- ra ^{24}Na em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amos- tras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da <u>ra</u> diação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos	79
40 -	Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) pa- ra ^{42}K em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amos- tras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da <u>ra</u> diação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos	80
41 -	Razão entre as atividades específicas mínimas detectã- veis para amostras colocadas em tubo de vidro (a_t , 5 e 25 ml) e beaker Marinelli (a_m , 2500 ml)	82
42 -	Razão entre as atividades específicas mínimeas detectã- veis para amostras colocadas diretamente em beaker Ma- rinelli - 2500 ml (a_s) e após extração colocadas em tu- bos de vidro (a'_s) de 5 ou 25 ml	84

LISTA DE FOTOGRAFIAS

<u>Fotografia</u>	<u>Página</u>
1 - Vista geral da blindagem e instrumentação nuclear	21
2 - Detalhe interno da blindagem, vendo-se o revestimento com lâminas de chumbo e cobre, e o beaker Marinelli sobre o detector	22
3 - Detalhe da armação de plástico acrílico para suporte do sistema detector e beaker Marinelli	23

1. RESUMO

Foi determinada a eficiência de detecção no fotopico para amostras aquosas de 5 a 25 ml em tubo de vidro e de 250 a 2500 ml em beaker Marinelli, em função da energia da radiação gama na faixa de 0,2 a 1,5 MeV, para cristal cintilador de NaI(Tl), de 3 x 3", tipo poço (7/8" diâmetro x 1 1/2" de altura).

A eficiência de detecção para amostras de 25 ml em tubo de vidro foi 1,4 vezes menor que para amostras de 5 ml, independentemente da energia da radiação gama. Para amostras de 2500 ml e 500 ml, colocadas em beaker Marinelli, a diminuição da eficiência de detecção foi da mesma ordem.

Na faixa estudada de energia de radiação gama, a eficiência de detecção em beaker Marinelli - 2500 ml foi de 4 a 8 vezes menor que a da detecção em tubo de vidro - 25 ml, e de 11 a 6 vezes em relação ao tubo de vidro - 5 ml.

A baixa eficiência de detecção em beaker Marinelli em relação ao tubo de vidro é compensada pelo grande volume empregado na medida da atividade do radioisótopo. Considerando-se o mesmo tempo de detecção da radiação de fundo, tempo necessário para detecção da amostra em beaker Marinelli - 2500 ml para se atingir um dado coeficiente de variação, é da ordem de 100 vezes menor do que quando se emprega tubo de vidro - 25 ml.

A atividade específica necessária para se atingir um mesmo coeficiente de variação, é 44 a 84 vezes menor quando se emprega beaker Marinelli - 2500 ml do que tubo de vidro - 5 ml, utilizando-se mesmos tempos de detecção da amostra e radiação de fundo nas duas técnicas. Comparando-se a detecção em beaker Marinelli - 2500 ml e tubo de vidro - 25 ml, pode-se atingir 12 a 23 vezes.

A redução do volume da amostra pelos métodos químicos, com eficiência de 100%, seria mais vantajosa para radioisótopos emissores de raios gama de baixa energia. Na faixa de 0,2 a 1,5 MeV, a concentração de 2500 ml para 25 ml, atingiria atividades específicas 8,3 a 4,3 vezes menores do que a detecção direta em beaker Marinelli - 2500 ml; se a redução for para 5 ml, poderia atingir níveis 11,4 a 5,9 vezes menores do que a detecção direta.

2. INTRODUÇÃO

O estudo de comportamento dos elementos micronutrientes e dos poluentes na relação solo-planta-animal tem sido efetuado utilizando-se radioisótopos emissores de raios gama como traçadores. Também têm sido utilizados radioisótopos naturais emissores de raios gama na avaliação da concentração de urânio, tório e potássio em minerais e no solo.

A detecção por espectrometria gama com cristal cintilador sólido NaI(Tl) desses radioisótopos em amostras de pequeno volume (5 - 25 ml), algumas vezes não permitem uma precisão adequada, e a falta de dados quantitativos para análise pode levar à perda total ou parcial do experimento. Quando possível, a utilização de maiores atividades no início do experimento pode acarretar exposição pessoal às radiações, dificultando a instalação do experimento e manuseio das amostras.

Em alguns experimentos, principalmente na nutrição animal e prospecção, é possível a obtenção de amostras radioativas de grande volume (3 litros) e a falta de equipamentos que possam usar essas amostras faz com que a detecção seja feita utilizando-se pequena fração delas, acarretando incerteza nos resultados.

O objetivo deste trabalho foi o de montar um sistema que permita trabalhar com amostras de pequeno e grande volume, determinar a eficiência e avaliar a sensibilidade de detecção (através da atividade mínima detectável) em função da energia dos raios gama emitidos pelos radioisótopos.

3. REVISÃO DE LITERATURA

A eficiência de detecção para fontes pontuais para cristais cintiladores sólidos NaI(Tl), tipos plano e poço, tem sido avaliada teoricamente e experimentalmente por vários autores. LAZAR *et alii* (1956) estimaram a eficiência de detecção para o fotopico na faixa de 0,15 a 2,76 MeV para fontes pontuais e cristais planos de $1\frac{1}{2} \times 1"$ e $3 \times 3"$, a partir da eficiência total e da razão pico para total para alguns radioisótopos emissores de um único raio gama. Para cristal de poço de $5 \times 5"$ ($\frac{5}{8} \times 2\frac{21}{2}"$), COLBY e COBBLE (1959) determinaram a eficiência para o fotopico para amostra pontual colocada no fundo do poço, na faixa de 0,28 a 1,33 MeV, enquanto que GUNNINK e STONER (1961) determinaram a eficiência incidente para fotopico para cristais de $3 \times 3"$, tipos plano e poço ($\frac{13}{16} \times 1\frac{29}{32}"$), utilizando fontes pontuais padronizadas pelas técnicas 4π e coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

Alguns autores elaboraram equações teóricas para o cálculo da eficiência total e para fotopico, para fontes e cristais de diversas formas. Assim, VERHEIJKE (1962) apresenta valores da eficiência total de detecção para fonte pontual colocada a diversas alturas do fundo de um cristal de poço $3 \times 3"$ ($\frac{7}{8} \times 1\frac{1}{2}"$) em função da energia da radiação gama, na faixa de 0,05 a 5 MeV. HOLMBERG e RIEPPO (1973) e RIEPPO *et alii* (1975) apresentam valores teóricos de eficiência para fotopico na faixa de 0,01 a 3 MeV para amostras sem absorção, água e osso, de 0,1 e 3,5 cm de altura, colocadas no poço de cristais cintiladores de $2 \times 2"$ ($1\frac{1}{8}" \times 1\frac{1}{2}"$) e $3 \times 3"$ ($1\frac{1}{8}" \times 1\frac{1}{2}"$), enquanto que RIEPPO e BLOMSTER (1976) apresentam os valores para amostra em forma de disco de 2×7 cm, colocada a 10 cm de um cristal plano de $3 \times 3"$. O efeito das dimensões do poço de cristal cintilador sobre a eficiência para fotopico na faixa de 0,01 MeV a 1 MeV foi estudado teoricamente por HOLMBERG e RIEPPO (1977), considerando cristais de 2×2 e $3 \times 3"$, com poço de 0,5-1,66 e 4 cm de diâmetro e 4,45 de altura, e amostra de 0,1 e 3,5 cm de

altura.

Para amostras de grande volume Marinelli sugeriu envolver detectores Geiger-Müller com a amostra (HILL *et alii*, 1950), e atualmente refere-se a beaker Marinelli a técnica de se utilizar beaker de fundo reentrante, onde é colocado o cristal cintilador. Para este tipo de geometria, VERHEIJKE (1970) apresenta um modelo teórico para determinação da eficiência total de detecção, na faixa de 0,05 a 5 MeV, para cristais cintiladores tipo plano de 3 x 3 e 4 x 4", e amostras aquosas de 1,44 - 3,8 e 7,45 litros. Utilizando valores de razão pico para total, determinados experimentalmente por HEATH (1964) e CHRISTALLER (1967), estimou os valores de eficiência para fotopico e determinou experimentalmente os valores para alguns radioisótopos.

IDDINGS *et alii* (1979) apresentam também um modelo teórico para estimativa da eficiência para fotopico, determinando-a experimentalmente para alguns radioisótopos em solução aquosa, colocados em beaker Marinelli de 1 litro e detectados com cristal plano de 4 x 4".

A utilização de beaker Marinelli em conjunto com detectores semicondutores de Ge(Li), são apresentadas por alguns autores. COSTRELL *et alii* (1980) apresenta uma fonte padronizada, de 450 ml, selada em beaker Marinelli, contendo vários radioisótopos emissores de raios gama na faixa de 0,08 a 1,33 MeV, e também uma curva de eficiência para fotopico para um detector cilíndrico de 53 x 52 mm (117 cm³).

Poucos autores têm feito comparação entre uma técnica tradicional de medida e aquela empregando amostras de grande volume. Assim, BERGER e GOANS (1979) sugerem na monitoração ambiental de ¹³¹I em leite, a utilização de frascos de fundo reentrante com capacidade de 4,54 litros de amostra e detector de NaI(Tl), de 3 x 3", tipo plano. Desse modo, a atividade mínima detectável é 2,5 pCi/litro, com 15 minutos de detecção, superando a técnica de se utilizar detector semicondutor e 1 litro da amostra (20 pCi/ml em 15 minutos de detecção). Apesar da técnica de separação com resina trocadora de íons ser mais sensível, é demorada, requerendo maior tempo de preparo de amostra e gastos com reagentes químicos (TAKAGI *et alii*, 1978). Esta técnica de detecção direta de emissores de raios gama em amostras colocadas em beaker Marinelli também tem sido utilizada na estimativa da atividade de ¹³⁷Cs em leite (HORWITZ, 1975; BARATTA e KNOWLES, Jr., 1973) e em alimentos para animais (WARD *et alii*, 1968). A determinação direta de ¹³⁷Cs em solos e vegetação da Ma

lâsia foi feita por LOWE (1975), utilizando-se 1 a 3 kg de solo e 100 a 600 gramas de matéria seca vegetal em beaker Marinelli de 2,4 litros e detector semi-condutor de Ge (Li) de 47 cm³, com resolução de 2,11 keV.

MÜLLER e HAASBROEK (1969), empregando a metodologia descrita por VASSILAKI *et alii* (1965), estimaram a concentração de potássio total no solo, detectando o radioisótopo natural ⁴⁰K (1,46 MeV) em amostras de 9,5 a 10,3 kg colocadas em beaker Marinelli, eliminando-se as interferências do ²¹⁴Bi (1,76 MeV) e ²⁰⁸Tl (2,62 MeV), das séries radioativas naturais do urânio e tório, respectivamente. Também utilizando beaker Marinelli com 2 kg de solo e cristal cintilador NaI(Tl) de 5 x 4", GUSTAFSON e BRAR (1964) determinaram a concentração de urânio (²¹⁴Bi), tório (²⁰⁸Tl) e potássio (⁴⁰K), e a atividade de alguns produtos de fissão nuclear (⁹⁵Zr/⁹⁵Nb, ¹⁰³Ru, ¹⁰⁶Ru/¹⁰⁶Rh, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁰Ba/¹⁴⁰La, ¹⁴¹Ce e ¹⁴⁴Ce/¹⁴⁴Pr) com o objetivo de se calcular a taxa de exposição proveniente do solo.

Outros autores têm utilizado amostras cilíndricas de grande volume colocadas diretamente sobre a face plana de cristais cintiladores sólidos para avaliação da atividade de alguns radioisótopos e concentração de potássio total em amostras de solo e de interesse geológico. Desse modo, TALIBUDEEN e YAMADA (1966) utilizaram 500 gramas de solo e cristais cintiladores NaI(Tl) de 1 3/4 x 2" e 3 x 3", na avaliação da concentração de potássio em solos, analisando-se a interferência dos radioisótopos pertencentes às séries radioativas naturais do urânio e tório na detecção do ⁴⁰K, e para a avaliação da concentração de urânio, tório e rádio em rochas fosfatadas, MENZEL (1968) utilizou amostras de 150 gramas colocadas sobre um cristal cintilador NaI(Tl) de 3 x 3", tipo plano, para detectar as radiações gama de 185 (²³⁵U) + 187 keV (²²⁶Ra), 239 (²¹²Pb, série do ²³²Th) + 242 keV (²¹⁴Pb, série do ²²⁶Ra) e 295 keV (²¹⁴Pb). Utilizando amostras de 300 gramas, HANSEN e HUNTINGTON (1969) estudaram a movimentação de tório em solos da Califórnia detectando o ²³²Th, ²²⁶Ra e ⁴⁰K em um perfil de solo da mesma região por espectrometria gama, e ²³²U, ²³⁴U, ²³⁸U, ²³⁰Th e ²³³Th por espectrometria alfa.

CIVETTA *et alii* (1969) estimaram a radioatividade do ⁴⁰K em amostras de origem geológica, utilizando-se amostras cilíndricas de 5, 30 e 50 cm³ (3,5 cm de diâmetro) colocadas entre dois cristais cintiladores NaI(Tl) de 3 x 3", tipo plano, opostos. Esta mesma

técnica já fora utilizada por LLOYD *et alii* (1968) na detecção de vários radioisótopos em amostras de 4 litros de solo colocadas entre dois cristais cintiladores de 8 x 4", tipo plano, estudando a influência da densidade do solo nessas determinações.

Alguns autores têm descrito sistemas sofisticados com detectores operando em coincidência ou anticoincidência, com a finalidade de se diminuir o nível da radiação de fundo e a região Compton (WATT e RAMSDEN, 1964). NIELSEN e KORNBERG (1965) e NIELSEN e PERKINS (1967) descrevem um sistema onde a amostra de até 925 cm³ (6 x 2") pode ser colocada entre dois cristais cintiladores NaI(Tl) de 11 x 6", tipo plano, opostos, e envoltos por um cilindro cintilador plástico operando em anticoincidência. SONNTAG (1967) descreve outro sistema onde um cristal cintilador NaI(Tl) de 4 x 4", tipo plano, opera em anticoincidência com um anel de detectores Geiger-Müller, e ainda com a possibilidade de um outro cristal cintilador de 3 x 1 1/2", tipo plano, operar em coincidência com o primeiro. A amostra, de até 2 litros, é colocada em beaker Marinelli em volta do primeiro detector. Outros sistemas são dados por ADAMS e GASPARINI (1970), WOGMAN *et alii* (1969), WOGMAN (1976), BRAUER *et alii* (1970, 1972, 1975) e HUNT *et alii* (1978).

4. TEORIA

Os modelos matemáticos elaborados por VERHEIJKE (1962, 1970), HEATH (1957) e CROUTHAMEL et alii (1975), entre outros, para a estimativa da eficiência total de detecção ou para fotopico em função da energia da radiação gama são um tanto complexos e elaborados sob condições ideais. Para detecção em beaker Marinelli, VERHEIJKE (1970) apresenta um modelo para a estimativa da eficiência total de detecção para cristal sólido. Neste modelo, a amostra contida no beaker Marinelli foi dividida em três partes: (A) um cilindro sobre o detector com o mesmo raio $\underline{r}$ do detector e altura $\underline{h}_2 - \underline{h}_1$; (B) um anel ao redor do detector com a mesma altura $\underline{t}$ do detector e tendo raios interno e externo $\underline{R}_1$ e $\underline{R}_2$ do beaker Marinelli; e (C) um anel ao redor do volume da parte A, considerado como a diferença de dois anéis $\underline{C}_2 - \underline{C}_1$, tendo alturas e raios externos $\underline{h}_2$ e $\underline{R}_2$, $\underline{h}_1$ e $\underline{R}_1$, respectivamente, e com raio interno $\underline{r}$, conforme mostra a figura 1. Para uma fonte puntual, colocada em qualquer posição dentro dessas três partes (figura 2) a eficiência total de detecção é dada por:

$$T_p(E\gamma) = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} [1 - e^{-\tau(E\gamma) \cdot x}] e^{-\mu(E\gamma) \cdot y} \cdot \sin\theta \cdot d\theta \quad (1)$$

sendo: $T_p(E\gamma)$ = eficiência total de detecção para o raio gama de energia $E\gamma$,

τ, μ = coeficiente de atenuação do cristal cintilador NaI(Tl) e da água, respectivamente,

x = percurso do raio gama através do cristal cintilador, e

y = percurso do raio gama através da amostra, paredes do beaker e do material que envolve o cristal.

Figura 1 - Amostra colocada no beaker Marinelli em volta do cristal cintilador sólido $NaI(Tl)$. Para cálculo teórico da eficiência total de detecção, a amostra foi dividida nas partes A, B e C.

Figura 2 - Arranjo geométrico mostrando as variáveis nas três partes da amostra contida no beaker Marinelli, em volta do cristal cintilador $NaI(Tl)$.

As integrais de volume de $T_p(E_\gamma)$ sobre as três partes, denominadas por $A(E_\gamma)$, $B(E_\gamma)$ e $C(E_\gamma) = C_2(E_\gamma) - C_1(E_\gamma)$, resolvidas por interação numérica por VERHEIJKE, dão a eficiência total para a amostra no beaker Marinelli:

$$T(E_\gamma) = \frac{A(E_\gamma) + B(E_\gamma) + C(E_\gamma)}{V} \quad (2)$$

onde:

$$V = \pi [R_2^2 (t + h_2) - R_1^2 (t + h_1)] \quad (3)$$

sendo: V = volume da amostra no beaker Marinelli.

Com os dados de HEATH (1964) e CHRISTALLER (1967) sobre a razão pico para total para fontes pontuais e cristal cintilador plano, VERHEIJKE estimou a eficiência de detecção para fotopico, e utilizando fontes padronizadas determinou experimentalmente essa eficiência para alguns radioisótopos. No modelo descrito, foi assumido cristal plano, e não cristal de poço, como foi o utilizado neste trabalho, e a utilização de razão pico para total obtidos para cristais planos não são adequados para cristal de poço. Além disso, a construção da blindagem, suportes de detector e beaker Marinelli podem afetar os resultados devido ao espalhamento da radiação gama. Desse modo, foi estabelecido um modelo e uma sequência experimental, permitindo a obtenção da eficiência de detecção para amostras radioativas colocadas em tubo de ensaio e dentro do poço de cristal cintilador, e também para amostras colocadas no beaker Marinelli e em volta do cristal.

Através do uso de amostras padronizadas, de atividade conhecida, pode-se calcular a eficiência de detecção para fotopico em função da energia da radiação gama pela equação:

$$\epsilon = \frac{R_L}{N} = \frac{R_L}{A \cdot f} \quad (4)$$

onde: ϵ = eficiência de detecção para fotopico para uma dada energia de radiação gama,

R_L = taxa de contagem no fotopico (contagens/minuto),

N = número de raios gama emitidos por minuto,

A = atividade da amostra, em desintegrações por minuto,

f = intensidade de emissão de raios gama.

Com o auxílio de soluções radioativas padronizadas, a eficiência de detecção em função da energia e do volume, no caso do tubo de vidro como no beaker Marinelli, seria determinada diretamente através da equação 4. Estas soluções padrões são caras e necessitam ser importadas; além disso, os radioisótopos de interesse biológico têm normalmente meia-vida curta e a aquisição dessas soluções serviria para um único experimento. Devido a isto, o uso de soluções radioativas não padronizadas é economicamente mais conveniente, mas há necessidade de uma série de passos para se chegar a meta final, que é a determinação experimental da eficiência de detecção para fotopico em função da energia da radiação gama e do volume das amostras colocadas em tubos de vidro (ϵ_{tV}) e em beaker Marinelli (ϵ_{MV}).

$$\epsilon_{tV} = \epsilon_{tV} (E_{\gamma}, V) \quad (5)$$

$$\epsilon_{MV} = \epsilon_{MV} (E_{\gamma}, V) \quad (6)$$

O primeiro passo é adquirir um conjunto de fontes padronizadas, de radioisótopos com meia-vida longa e passíveis de serem usadas em outros experimentos. Normalmente essas fontes são seladas em bastões plásticos e tidas como pontuais, e com elas poder-se-ia determinar a eficiência de detecção ϵ_b em função da energia da radiação gama:

$$\epsilon_b = \epsilon_b (E_{\gamma}) \quad (7)$$

através do emprego da equação 4.

O segundo passo seria a determinação da eficiência de detecção no tubo de vidro para um determinado volume (5 ml, por exemplo). Usando-se bastões de plástico e tubos de vidro com 5 ml contendo amostras de mesma atividade, tem-se pela equação 4:

$$\epsilon_b = \frac{C_b}{A \cdot f} \quad (8)$$

$$\epsilon_{t5} = \frac{C_{t5}}{A \cdot f} \quad (9)$$

Portanto

$$\epsilon_{t5} = \frac{C_{t5}}{C_b} \cdot \epsilon_b \quad (10)$$

ou
$$\epsilon_{t5} = R \cdot \epsilon_b \quad (11)$$

sendo: $R = C_{t5}/C_b$ = razão entre as taxas de contagem obtidas no tubo de vidro com 5 ml e no bastão plástico.

Esta razão R deve depender da energia da radiação, e portanto a eficiência de detecção de raios gama em função da energia, para amostras de 5 ml colocadas em tubo de vidro, é dada pela equação:

$$\epsilon_{t5} = R(E_\gamma) \cdot \epsilon_b(E_\gamma) \quad (12)$$

Deve ser notado que a atividade deve ser a mesma, mas não há necessidade de se conhecer o seu valor. Portanto, um mesmo volume da solução radioativa não padronizada é pipetado para o bastão de plástico e para o tubo de vidro, e neste tubo o volume é completado até o volume desejado (5 ml).

Para se ter a eficiência de detecção em certos volumes, transferem-se para tubos de vidro os volumes desejados (5 ml, 10 ml,.... até 25 ml) de uma solução radioativa não padronizada e faz-se a detecção. Aplicando a equação 4 neste caso, tem-se:

$$\epsilon_{t5} = \frac{C_{t5}}{A_5 \cdot f} \quad (13)$$

$$\epsilon_{tV} = \frac{C_{tV}}{A_V \cdot f} \quad (14)$$

Sendo
$$A_V = A_5 \cdot \left(\frac{V}{5}\right) \quad (15)$$

pode-se escrever que
$$\epsilon_{tV} = \frac{C_{tV}}{A_5 \cdot \left(\frac{V}{5}\right) \cdot f} \quad (16)$$

e também
$$\epsilon_{tV} = \frac{C_{tV}}{C_{t5}} \cdot \left(\frac{5}{V}\right) \cdot \epsilon_{t5} \quad (17)$$

A razão entre as taxas de contagem obtidas com o tubo de vidro contendo a amostra de volume qualquer V e com a amostra de 5 ml, representa simplesmente um fator de geometria para o tubo de vidro.

$$f_t = \frac{C_{tV}}{C_{t5}} \cdot \frac{5}{V} \quad (18)$$

O valor deste fator de geometria deve depender também da

energia da radiação gama, além do volume da amostra. Logo, pode-se escrever de modo geral:

$$\epsilon_{tV} = f_t(E_\gamma, V) \cdot \epsilon_{t5} \quad (19)$$

Substituindo o valor de ϵ_{t5} dado pela equação 12, tem-se:

$$\epsilon_{tV} = R(E_\gamma) \cdot f_t(E_\gamma, V) \cdot \epsilon_b(E_\gamma) \quad (20)$$

No caso de detecção em beaker Marinelli, a eficiência pode ser determinada, detectando-se a mesma atividade em tubo de vidro e no beaker. Pipetando-se um mesmo volume de solução radioativa não padronizada para um tubo de vidro e para um beaker Marinelli, e completando-se o volume para 5 e 2500 ml, respectivamente, a eficiência de detecção em tubo de vidro seria dada pela equação 9 e para o beaker Marinelli seria:

$$\epsilon_{M2500} = \frac{C_{M2500}}{A \cdot f} \quad (21)$$

Portanto

$$\epsilon_{M2500} = \frac{C_{M2500}}{C_{t5}} \cdot \epsilon_{t5} \quad (22)$$

ou

$$\epsilon_{M2500} = R' \cdot \epsilon_{t5} \quad (23)$$

sendo: $R' = C_{M2500}/C_{t5}$ = razão entre as taxas de contagem obtidas no beaker Marinelli com 2500 ml e no tubo de vidro com 5 ml. Esta razão R' deve também depender da energia da radiação gama e substituindo o valor da eficiência de detecção em tubo de vidro com 5 ml (ϵ_{t5}) em relação a do bastão plástico (ϵ_b), dada pela equação 12, tem-se:

$$\epsilon_{M2500} = R'(E_\gamma) \cdot R(E_\gamma) \cdot \epsilon_b(E_\gamma) \quad (24)$$

Do mesmo modo que no tubo de vidro a eficiência de detecção para outros volumes no beaker Marinelli pode ser estimada transferindo-se volumes desejados (250, 500, ... até 2500 ml) de uma solução radioativa não padronizada e fazendo-se a detecção em seguida. A eficiência de detecção para 2500 ml e para qualquer volume é dada então pelas equações:

$$\epsilon_{M2500} = \frac{C_{M2500}}{A_{2500} \cdot f} \quad (25)$$

$$\epsilon_{MV} = \frac{C_{MV}}{A_V \cdot f} \quad (26)$$

sendo $A_V = A_{2500} \cdot \left(\frac{V}{2500}\right)$

pode-se escrever $C_{MV} = \frac{C_{MV}}{C_{M2500}} \cdot \left(\frac{2500}{V}\right) \cdot \epsilon_{M2500}$ (27)

A razão entre as taxas de contagem obtidas com o beaker Marinelli com a amostra de volume qualquer V e com a amostra de 2500 ml, representa também um fator de geometria para o beaker Marinelli:

$$f_M = \frac{C_{MV}}{C_{M2500}} \cdot \frac{2500}{V} \quad (28)$$

O valor deste fator de geometria deve depender também da energia da radiação gama, além do volume da amostra, de modo semelhante ao fator de geometria para o tubo de vidro. Logo pode-se escrever de modo geral:

$$\epsilon_{MV} = f_M(E_\gamma, V) \cdot \epsilon_{M2500} \quad (29)$$

substituindo o valor de ϵ_{M2500} dado pela equação 24, tem-se:

$$\epsilon_{MV} = R'(E_\gamma) \cdot R(E_\gamma) \cdot f_M(E_\gamma, V) \cdot \epsilon_b(E_\gamma) \quad (30)$$

5. MATERIAIS

5.1. Instrumentação Nuclear

O espectrômetro gama multicanal usado neste trabalho é composto de:

- conjunto selado modelo 12W12 fabricado pela Harshaw Chemical Company, constituído de um cristal cintilador NaI(Tl) de 3 x 3 polegadas, tipo poço (7/8 polegadas de diâmetro e 1 1/2 polegadas de profundidade) e uma válvula fotomultiplicadora tipo 8054,
- divisor de tensão e pré-amplificador, marca ORTEC, modelo 266,
- fonte de alta voltagem marca ORTEC, modelo 456, fixada em 1000 volts,
- amplificador e analisador monocanal, marca ORTEC, modelo 490 B,
- analisador multicanal, marca NORTHERN, modelo NS-633, com 256 canais analisadores;
- impressora de dados, marca Teletype,
- registrador gráfico X-t, marca Moseley.

5.2. Radioisótopos

5.2.1. Amostras radioativas padronizadas

As amostras radioativas utilizadas como padrões foram adquiridas da New England Nuclear (Gamma Reference Rod Source Set - Catálogo nº NES-100S) e as características físicas desses radioisótopos são dadas na Tabela 1. Essas fontes são seladas em bastões de plástico acrílico, e as dimensões externas e um desenho esquemático são fornecidos pelo fabricante (figura 3).

Tabela 1 - Características físicas dos radioisótopos utilizados nas amostras padronizadas (New England Nuclear, 1977)

Radioisótopo	Meia-Vida	Modo de Decaimento*	Energia do raio gama (E _γ , MeV)	Intensidade de emissão de raios gama (%)	Atividade (μCi, em 01/11/77)
Co-57	270,9 ± 0,6 dias	C.E.	0,122 0,136	85,59 10,61	0,159
Ba-133	10,5 ± 0,1 anos	C.E.	0,303 0,356 0,384	18,66 62,4 8,86	0,103
Cs-137	30,0 ± 0,2 anos	β ⁻	0,662	85,0	0,136
Mn-54	312,5 ± 0,5 dias	C.E.	0,835	99,98	0,142
Co-60	5,271 ± 0,001 anos	β ⁻	1,173 1,332	99,9 100,0	0,120

* C.E. - captura eletrônica
β⁻ - beta negativo

GAMMA REFERENCE SOURCE SETS

Seven relatively long-lived gamma emitting (30..KeV to 2.6 MeV) nuclides in either rod or disc form are packaged with certificates of calibration in a walnut storage case.

SPECIFICATIONS

NEN's rod and disc sources have the radioactivity as point sources precisely located on the axis: 6mm from the rounded end of the rod source, and 1.5mm from either surface of a disc source.

Rod Dimensions: 12.7mm diameter
127mm length

Disc Dimensions: 25mm diameter
3.2mm thick

Figura 3 - Dimensões externas das fontes radioativas padronizadas e seladas em bastão plástico acrílico, segundo catálogo da New England Nuclear, 1980, p. 128-129.

5.2.2. Amostras radioativas não padronizadas

Na escolha dos radioisótopos foram levados em consideração dois aspectos: o espectro de energia de raios gama, de forma a permitir uma boa discriminação do fotopico de maior intensidade, e a meia-vida, para evitar problemas de contaminação do beaker Marinelli. Dentro desses dois aspectos, enquadraram-se o ^{24}Na , ^{42}K , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{131}I e ^{203}Hg . Os radioisótopos de meia-vida mais longa, ou seja ^{54}Mn , ^{65}Zn e ^{203}Hg , foram adquiridos da Amersham-Searle, enquanto que o ^{24}Na , ^{42}K e ^{131}I foram adquiridos no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Cidade Universitária, São Paulo, e o ^{56}Mn foi produzido no Centro de Energia Nuclear na Agricultura, através da ativação neutrônica com uma fonte de 0,5 μg de ^{252}Cf , cedida pela Agência Internacional de Energia Atômica, Viena, através do Programa de Empréstimo de Fontes de Neutrons (Contrato AIEA-CENA nº 17). As características principais destes radioisótopos selecionados são mostradas na Tabela 2.

5.2.3. Blindagem, beaker Marinelli e tubo de ensaio

A blindagem é de ferro fundido, formando um cilindro de 10 cm de espessura, 46 cm de diâmetro externo e 50 cm de altura. É fechado na parte inferior por uma tampa de 10 cm e na parte superior por uma tampa móvel de 26 cm de espessura, permitindo fácil acesso ao interior da blindagem (fotografia 1). Internamente foi feito um revestimento utilizando uma lâmina de chumbo de 2,5 mm de espessura para diminuir o nível de radiação espalhada proveniente do ferro e uma lâmina de 1 mm de cobre para diminuir o das radiações gama e raios-X de baixas energias provenientes do chumbo (fotografia 2). Dentro da blindagem também foi colocada uma armação de plástico acrílico e PVC com a função de suportar o conjunto detector e o beaker Marinelli (fotografia 3).

Os beakers Marinelli, fabricados pela Hubert Lando, Jr., Inc. (425 Merrick Ave., Westbury, NY 11590) são de polietileno de 3,4 mm de espessura e externamente tem 17 cm de

Tabela 2 - Características físicas dos radioisótopos utilizados nas amostras não padronizadas (NASCIMENTO F9, 1977)

Radioisótopo	Meia-Vida	Modo de Decaimento*	Energia do raio gama (E _γ , MeV)	Intensidade de emissão de raios gama (%)
Hg-203	46,57 dias	β^-	0,279	77
I-131	8,07 dias	β^-	0,274 0,364 0,637	5,9 79 6,7
Mn-54	303 dias	C.E.	0,835	100
Mn-56	2,58 horas	β^-	0,847 1,811 2,113	99 29 15
Zn-65	243,6 dias	β^+ , C.E.	1,115	49
Na-24	15,0 horas	β^-	1,368 2,754	100 100
K-42	12,4 horas	β^-	1,524	18

*C.E. - captura eletrônica
 β^- - beta negativo
 β^+ - beta positivo

diâmetro e 21,5 cm de altura. A cavidade interna que fica em contacto com o cristal cintilador tem 8,35 mm de diâmetro e 8,35 cm de altura.

Os tubos de ensaio são de vidro comum de 1,2 mm de espessura, com dimensões externas de 2,55 cm de diâmetro e 8,4 cm de altura, fundo chato, ajustando-se perfeitamente ao poço do cristal cintilador.

Fotografia 1 - Vista geral da blindagem e instrumentação nuclear.

Fotografia 2 - Detalhe interno da blindagem, vendo-se o revestimento com lâminas de chumbo e cobre, e o beaker Marinelli sobre o detector.

Fotografia 3 - Detalhe da armação de plástico acrílico para suporte do sistema detéctor e beaker Marinelli.

6. MÉTODOS

6.1. Eficiência de detecção de radioisótopos em bastão de plástico

A eficiência para fótópico (ϵ) em função da energia, pode ser estimada, partindo-se da sua definição, isto é, a razão entre o nº de raios gama detectados ou a taxa líquida de contagem no fótópico (R_L) e o nº de raios gama emitidos (N) pela fonte radioativa:

$$\epsilon = \frac{R_L}{N} = \frac{R_L}{A \cdot f} \quad (31)$$

sendo: N = número de raios gama emitidos por minuto

A = atividade = número de desintegrações por minuto (dpm)

f = intensidade de emissão ou número de raios gama emitidos por desintegração.

O número de raios gama emitidos por minuto (N) é calculado a partir da atividade atual (A). Por sua vez, esta atividade atual é calculada pela equação que descreve o decaimento radioativo:

$$A = A_0 \cdot e^{-0,693 \cdot t/T} \quad (32)$$

onde: A , A_0 = atividade atual e inicial(dpm), respectivamente,

t = tempo decorrido, e

T = meia-vida física do radioisótopo.

Para a obtenção do número de raios gama ou taxa líquida de contagem no fótópico para um determinado radioisótopo, é preciso em primeiro lugar fazer-se o levantamento do espectro de amplitude dos pulsos eletrônicos produzidos pela interação dos raios gama com o cristal cintilador. Devido a proporcionalidade existente entre a energia da radiação e a amplitude do pulso, este espec -

tro é também chamado de espectro de energia (MONTANHEIRO *et alii*, 1977).

Este espectro de energia é obtido através de um analisador multi canal, onde cada canal acumulará um certo número de contagens devido a uma determinada energia dissipada no detector. Os dados de contagem em cada canal são transferidos a uma impressora de dados ou a um registrador gráfico. Plotando-se esses dados em papel milimetrado, ou seja, taxa de contagem versus canal (energia) pode-se definir claramente o fotopico de maior intensidade de cada radioisótopo.

A taxa de contagem líquida, que é o número de raios gama detectados, é obtida calculando-se a área sob este fotopico; lembrando-se de fazer as devidas correções referentes a radiação de fundo e a área do trapézio sob a curva, conforme mostram as figuras 5 a 9.

6.2. Eficiência de detecção de radioisótopos em tubo de vidro

Nesta fase do trabalho procura-se verificar se a curva de eficiência de detecção vs energia da radiação, feita com os bastões, poderia ser utilizada, quando fossem feitas leituras nos tubos de vidro.

Isto foi feito confeccionando-se bastões de plástico acrílico, de dimensões próximas às das amostras radioativas padrões (Fig. 4). Nestes bastões foram injetados 30 μ l de amostra e mesmo volume foram colocados em três tubos de vidro e acrescentou-se 5 ml de água destilada em cada tubo. Neste experimento foram utilizados somente os radioisótopos ^{203}Hg , ^{54}Mn e ^{65}Zn , abrangendo uma faixa de energia de raios gama de 0,28 a 1,115 MeV, e foram feitas 3 repetições por radioisótopo.

Sendo iguais as atividades contidas no bastão e no tubo de vidro, as taxas de contagem serão respectivamente:

$$C_b = \epsilon_b \cdot A \cdot f \quad (33)$$

$$C_{t5} = \epsilon_{t5} \cdot A \cdot f \quad (34)$$

$$\text{e consequentemente } \epsilon_{t5} = \frac{C_{t5}}{C_b} \cdot \epsilon_b \quad (35)$$

Figura 4 - Dimensões das fontes radioativas não padronizadas, em bastões de plástico acrílico (dimensões em milímetros).

Fazendo-se

$$\frac{C_{t5}}{C_b} = R \quad (36)$$

tem-se

$$\epsilon_{t5} = R \cdot \epsilon_b \quad (37)$$

Portanto, conhecendo-se a razão R entre as taxas de contagem no tubo de vidro e no bastão em função da energia da radiação gama, pode-se estimar a eficiência de detecção de radioisótopos em amostras líquidas de 5 ml, quando colocadas em tubos de vidro.

Procurou-se também determinar as eficiências de detecção para radioisótopos em solução aquosa em tubos de vidro com outros volumes. Para isso foram preparadas soluções radioativas de ^{24}Na , ^{42}K , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{131}I e ^{203}Hg , e foram feitas detecções colocando-se 5 em 5 ml dessas soluções em tubos de vidro, até atingir o volume de 25 ml. Desse modo, a eficiência de detecção em tubo de vidro em função do volume da amostra radioativa pode ser calculada pela equação:

$$\epsilon_{tV} = \frac{CR_V}{CR_5} \left(\frac{5}{V} \right) \epsilon_{t5} \quad (38)$$

onde: ϵ_{tV} = eficiência de detecção em tubo de vidro para qualquer volume da amostra radioativa,

CR_V , CR_5 = taxa de contagem relativa obtida com a amostra de qualquer volume e com 5 ml, respectivamente,

V = volume da amostra radioativa, em ml, e

ϵ_{t5} = eficiência de detecção em tubo de vidro para amostra de 5 ml.

Chamando

$$\frac{CR_V}{CR_5} \cdot \frac{5}{V} = f_t \quad (39)$$

sendo f_t = fator de geometria relativo ao tubo de vidro, tem-se:

$$\epsilon_{tV} = f_t \cdot \epsilon_{t5} \quad (40)$$

Convém ressaltar que este fator de geometria f_t , representa a eficiência relativa de detecção para detecção em tubo de vidro (ϵ_{Rt}), tomando-se como unitária a eficiência de detecção obtida com a amostra de 5 ml.

6.3. Eficiência de detecção de radioisótopo em beaker Marinelli

Conhecendo-se a eficiência de detecção em tubo de vidro para uma determinada energia da radiação gama, pode-se estimar a eficiência em beaker Marinelli, detectando-se amostra de mesma atividade. Assim, foram preparados tubos de vidro com 5 ml e beaker Marinelli com 2500 ml de solução radioativa, mas contendo a mesma atividade. Neste experimento foram utilizados os radioisótopos ^{24}Na , ^{42}K , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{131}I e ^{203}Hg .

Do mesmo modo que o item anterior, as taxas de contagem obtidas no tubo de vidro com 5 ml e no Marinelli com 2500 ml serão dadas, respectivamente, por:

$$C_{t5} = \epsilon_{t5} \cdot A \cdot f \quad (41)$$

$$C_{M2500} = \epsilon_{M2500} \cdot A \cdot f \quad (42)$$

Sendo iguais as atividades, pode-se escrever:

$$\epsilon_{M2500} = \frac{C_{M2500}}{C_{t5}} \cdot \epsilon_{t5} \quad (43)$$

e fazendo-se

$$\frac{C_{M2500}}{C_{t5}} = R' \quad (44)$$

tem-se

$$\epsilon_{M2500} = R' \cdot \epsilon_{t5} \quad (45)$$

Desse modo, conhecendo-se a razão entre as taxas de contagem no beaker Marinelli e no tubo de vidro e também a eficiência de detecção para amostra de 5 ml em tubo de vidro em função da energia da radiação gama, pode-se estimar a eficiência na detecção em beaker Marinelli para amostra de 2500 ml.

Do mesmo modo que o item anterior, procurou-se determinar a eficiência de detecção para amostras de outros volumes em beaker Marinelli. Para isso, foram preparadas soluções radioativas de ^{24}Na , ^{42}K , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{131}I e ^{203}Hg e foram feitas detecções colocando-se 250 em 250 ml dessas soluções no beaker Marinelli, até atingir o volume de 2500 ml. Também normalizou-se as

taxas de contagem, assumindo como unitária a taxa de contagem obtida com 2500 ml. Assim, a eficiência de detecção em beaker Marinelli em função do volume da amostra radioativa, pode ser calculada pela equação:

$$\epsilon_{MV} = \frac{CR_V}{CR_{2500}} \cdot \frac{2500}{V} \cdot \epsilon_{M2500} \quad (46)$$

onde:

ϵ_{MV} = eficiência de detecção em beaker Marinelli para qualquer volume da amostra radioativa,

CR_V, CR_{2500} = taxa de contagem relativa, obtida com a amostra de qualquer volume e com a de 2500 ml, respectivamente,

V = volume da amostra radioativa, em ml,

ϵ_{M2500} = eficiência de detecção em beaker Marinelli para amostra de 2500 ml.

Chamando

$$\frac{CR_V}{CR_{2500}} \cdot \frac{2500}{V} = f_M \quad (47)$$

sendo f_M = fator relativo ao beaker Marinelli, tem-se

$$\epsilon_{MV} = f_M \cdot \epsilon_{M2500} \quad (48)$$

Deve-se também notar que este fator de geometria f_M representa a eficiência relativa de detecção para o beaker Marinelli (ϵ_{RM}), tomando-se como unitária a eficiência de detecção feita com 2500ml.

6.4. Atividade específica mínima detectável

Para uma medida da atividade de uma amostra radioativa, a taxa líquida de contagem (R_L), o seu desvio padrão (S_L) e o coeficiente de variação (CV) são dados pelas equações:

$$R_L = R_B - R_F \quad (49)$$

$$S_L = \sqrt{S_B^2 + S_F^2} = \sqrt{\frac{R_B}{t_B} + \frac{R_F}{t_F}} \quad (50)$$

$$CV = \frac{S_L}{R_L} \quad (51)$$

sendo: R_B , S_B = taxa bruta de contagem e desvio padrão, devido a amostra e a radiação de fundo,

R_F , S_F = taxa de contagem e desvio padrão da radiação de fundo (cpm), e

t_B , T_F = tempos de detecção da amostra radioativa e da radiação de fundo (minutos), respectivamente.

Substituindo o valor de R_B (dado pela equação 49) na equação 50, pode-se escrever para o coeficiente de variação:

$$CV = \frac{\sqrt{\frac{R_L + R_F}{t_B} + \frac{R_F}{t_F}}}{R_L} \quad (52)$$

Rearranjando os termos, tem-se que:

$$R_L = \frac{1 + \sqrt{1 + 4 \cdot CV^2 \cdot t_B \cdot R_F \left(1 + \frac{t_B}{t_F}\right)}}{2 \cdot CV^2} \quad (53)$$

Por outro lado, a taxa líquida de contagem é dada pela equação:

$$R_L = a \cdot V \cdot f \cdot \epsilon \quad (54)$$

sendo: a = atividade específica da amostra (dpm/ml).

Portanto:

$$a = \frac{1 + \sqrt{1 + 4 \cdot CV^2 \cdot t_B \cdot R_F \left(1 + \frac{t_B}{t_F}\right)}}{2 \cdot V \cdot f \cdot \epsilon \cdot CV^2} \quad (55)$$

Analisando a equação 55, a representa a atividade específica mínima que deve ter uma amostra radioativa para que sua estimativa seja feita com um coeficiente de variação CV desejado, detectando-se um volume V da amostra e a radiação de fundo pelos tempos t_B e t_F , respectivamente, e conhecendo-se de antemão a taxa de radiação de fundo (R_F), a intensidade de emissão de raios gama (f) e a eficiência de detecção (ϵ).

7. RESULTADOS E DISCUSSÃO

7.1. Eficiência de detecção de radioisótopos em bastão de plástico

Foram levantados os espectros de todos os radioisótopos com o intuito de se definir convenientemente as áreas sob o fotopico (figuras 5 a 9). Depois de feita a correção da radiação de fundo e da área de fotopico sob a curva, obteve-se as taxas de contagem líquidas, as quais relacionadas com o número de raios gama emitidos pelos radioisótopos, forneceram as eficiências de detecção - (equação 31) mostradas na Tabela 3. Plotando-se os dados de eficiência vs energia da radiação em papel semi-logaritmo, obteve-se a figura 10. Nesta figura observa-se que os pontos estão praticamente alinhados e através da regressão linear obteve-se uma equação para a eficiência no bastão (ϵ_b) em função da energia da radiação gama (E_γ , MeV)

$$\epsilon_b = 1,1152 \cdot e^{-2,2255 E_\gamma} \quad (56)$$

$$r = 0,9972 \text{ (sig. 1\%)}$$

Mas a curva que melhor se adaptaria segundo PRICE (1958), baseado no fato que o coeficiente de absorção de massa devido ao efeito fotoelétrico ser proporcional a $Z \cdot E_\gamma^{-3,5}$, onde Z é o número atômico médio do cristal cintilador, seria:

$$\epsilon_b = 0,21033 + 0,000406 \cdot E_\gamma^{-3,5} \quad (57)$$

$$r = 0,8622 \text{ (sig . 5\%)}$$

Procurou-se também ajustar estes dados a uma curva exponencial e

Tabela 3 - Eficiência de detecção (ϵ_b) em função da energia da radiação gama (E_γ), obtidas com amostras padronizadas em bastões plásticos.

Radioisótopo	Energia da Radiação Gama (E_γ , MeV)	Eficiência de Detecção (ϵ_b)
Co-57	0,122	0,844
Ba-133	0,356	0,497
Cs-137	0,662	0,248
Mn-54	0,835	0,197
Co-60	1,17 1,33	0,074 0,060

Figura 10 - Eficiência de detecção (ϵ_b) em função da energia da radiação gama (E_γ), obtida com amostras padronizadas em bastões de plástico acrílico.

a equação obtida foi:

$$\epsilon_b = 0,1167 \cdot E_Y^{-1,0904} \quad (58)$$

$$r = 0,9415 \text{ (sig. 1\%)}$$

Comparando-se o coeficiente de correlação linear nos três casos, observa-se que o da primeira equação apresentou o maior valor, significando que aqueles dados se ajustam melhor segundo aquela equação.

7.2. Eficiência de detecção de radioisótopos em tubo de vidro

Foram levantados os espectros de energias das amostras radioativas colocadas em bastões de plástico e em tubo de vidro - 5 ml, definindo-se em seguida as áreas sob os fotopicos. Para as amostras em tubos de vidro - 5 ml, os espectros do ^{203}Hg , ^{54}Mn e ^{65}Zn , são mostrados nas figuras 11, 12 e 13, respectivamente.

A razão R (equação 36) entre as taxas de contagem obtidas para amostras de mesma atividade em tubos de vidro (5 ml) e no bastão, para os radioisótopos ^{203}Hg , ^{54}Mn e ^{65}Zn , encontra-se na tabela 4 e representada na figura 14. Relacionando-se o valor da razão das taxas de contagem em função da energia da radiação gama, obteve-se a equação:

$$R = 0,9753 + 0,09959 \cdot E_Y \quad (59)$$

$$r = 0,9997 \text{ (sig. 5\%)}$$

podendo-se concluir que a eficiência de detecção em tubo de vidro (5 ml) é praticamente a mesma do bastão, mas a equação acima foi utilizada nos cálculos posteriores.

Substituindo-se o valor de R (equação 59) e ϵ_b (equação 58) na equação 37, tem-se:

$$\epsilon_{t5} = (0,9753 + 0,09959 E_Y) \cdot 0,1152 \cdot e^{-2,2255 E_Y} \quad (60)$$

ou

$$\epsilon_{t5} = (1,08765 + 0,1111 E_Y) e^{-2,2255 E_Y} \quad (61)$$

a qual fornece a eficiência de detecção no tubo de vidro de 5 ml

Tabela 4 - Razões (R) entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade, colocadas no tubo de vidro - 5 ml e no bastão plástico, em função da energia da radiação gama (E_γ).

Radioisótopo	Energia da Radiação (E_γ , MeV)	R
Hg-203	0,279	1,0027
Mn-54	0,835	1,0595
Zn-65	1,115	1,0856

Figura 14 - Razão (R) entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade colocadas no tubo de vidro - 5 ml - e no bastão plástico, em função da energia da radiação gama (E_γ).

em função da energia da radiação gama emitida pelo radioisótopo, e é representada na figura 15. Na tabela 5 são apresentadas as eficiências para alguns radioisótopos de interesse, estimadas de acordo com a equação 61.

Os espectros de energia para ^{131}I , ^{56}Mn , ^{24}Na e ^{42}K , em tubos de vidro com 5 ml de solução radioativa são dados nas figuras 16 a 19, respectivamente. Os dados das taxas relativas de contagem para os volumes de 5 a 25 ml, de 5 em 5 ml, para os radioisótopos ^{24}Na , ^{42}K , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{65}Zn , ^{131}I e ^{203}Hg , são mostrados na tabela 6, e visualizados na figura 20.

Nota-se que as taxas relativas obtidas nos diversos volumes independem da energia da radiação gama. Com os valores médios de cada volume, foi obtida uma relação entre a taxa relativa de contagem em função do volume da amostra colocada no tubo de vidro:

$$CR_V = -2,8980 \cdot 10^{-2} + 6,6029 \cdot 10^{-2}V - 9,9171 \cdot 10^{-4}V^2 \quad (62)$$

$$r^2 = 0,9997 \text{ (sig. 1\%)}$$

Com o auxílio dessa equação pode-se estimar a contribuição de cada 5 ml da amostra adicionados ao tubo de vidro à taxa de contagem, e com isto estimar a eficiência relativa de detecção de cada "camada" (ϵ_{ct}) de 5 ml tomando-se como unitária a dos primeiros 5 ml. Deve ser notado que esta eficiência independe da energia da radiação gama, e pode ser expressa pela equação:

$$\epsilon_{ct} = \frac{CR_V - CR_{V-5}}{CR_5} \quad (63)$$

sendo: ϵ_{ct} = eficiência relativa de detecção no tubo de vidro para camada de 5 ml da amostra, compreendida entre o volume V e V-5 ml.

CR_V , CR_{V-5} e CR_5 = taxas relativas de contagem devido aos volumes V, V-5 e 5 ml da amostra, respectivamente.

Os dados da eficiência de detecção de cada camada de 5 ml para o tubo de vidro são mostrados na tabela 7 e figura 21. Enquanto que os primeiros 5 ml são detectados com uma eficiência relativa de 100%, os últimos 5 ml (de 20 a 25 ml) são detectados com apenas 38,71% de eficiência. Deve também ser notado que o decréscimo

Figura 15 - Eficiência de detecção em função da energia da radiação gama (E_γ), obtidas com amostras radioativas de vários volumes, colocadas em tubos de vidro (ϵ_t) e em beaker Marinelli (ϵ_M).

Tabela 5 - Eficiência de Detecção em função da energia da radiação gama (E_γ), obtida com amostras radioativas de vários volumes em tubos de vidro (ϵ_t) em beaker Marinelli (ϵ_M).

Radioisótopo	H-203	I-131	Mn-54	Zn-65	Na-24	K-42
Energia (E_γ , MeV)	0,279	0,364	0,835	1,115	1,368	1,524
ϵ_b	0,5994	0,4961	0,1739	0,09326	0,05311	0,03753
Volume (V, ml)						
ϵ_t	5	0,6012	0,5018	0,1013	0,05903	0,04230
	10	0,5787	0,4830	0,09752	0,05682	0,04092
	15	0,5353	0,4467	0,09019	0,05255	0,03766
	20	0,4866	0,4061	0,08200	0,04778	0,03424
	25	0,4358	0,3637	0,07344	0,04279	0,03066
ϵ_M	250	0,07201	0,06273	0,01849	0,01224	0,009487
	500	0,08440	0,07353	0,02167	0,01435	0,01112
	750	0,08486	0,07393	0,02179	0,01442	0,01118
	1000	0,08234	0,07173	0,02114	0,01399	0,01085
	1250	0,07862	0,06849	0,02019	0,01336	0,01036
	1500	0,07430	0,06473	0,01908	0,01263	0,009789
	1750	0,06964	0,06067	0,01788	0,01184	0,009176
	2000	0,06478	0,05643	0,01663	0,01101	0,008534
	2250	0,05976	0,05206	0,01534	0,01016	0,007873
	2500	0,05464	0,04760	0,01403	0,009288	0,007199
	5	78,49	60,04	41,13	32,71	28,37
	2500	81,40	61,00	40,01	30,88	27,08
R_F (cpm)

Tabela 6 - Taxas relativas de contagem em função do volume da amostra em tubos de vidro, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 25 ml. É também apresentado o fator de geometria (f_t) relativo ao tubo de vidro, baseando-se no volume de 5 ml.

Radioisótopo	Volume (ml)	5	10	15	20	25
Hg-203		0,2886	0,4860	0,7411	0,8911	1,0000
I-131		0,2830	0,5365	0,7542	0,9072	1,0000
Mn-54		0,2855	0,5408	0,7516	0,9139	1,0000
Mn-56		0,2666	0,5246	0,7400	0,8797	1,0000
Zn-65		0,2864	0,5492	0,7538	0,9001	1,0000
Na-24		0,2672	0,5075	0,7144	0,8926	1,0000
Média		0,2797	0,5241	0,7425	0,8974	1,0000
Fator de Geometria (f_t)	experimental	1,0000	0,9369	0,8849	0,8021	0,7150
	teórico (eq.64)	1,0000	0,9626	0,8903	0,8094	0,7249

Figura 20 - Taxa relativa de contagem (média de sete radioisótopos) em função do volume da amostra colocada em tubo de vidro, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 25 ml.

Tabela 7 - Eficiência relativa de detecção para camadas de 5 e 250 ml de amostras radioativas colocadas em tubo de vidro e beaker Marinelli, respectivamente, tomando-se como unitária a eficiência de contagem da primeira camada.

tubo de vidro			beaker Marinelli		
Volume (V,ml)	Teórica	Experimental	Volume (V,ml)	Teórica	Experimental
0 - 5	1,0000	1,0000	0 - 250	1,0000	1,0000
5 - 10	0,9251	0,8740	250 - 500	1,3443	1,1029
10 - 15	0,7460	0,7808	500 - 750	1,1912	1,1469
15 - 20	0,5666	0,5538	750 -1000	1,0378	0,9915
20 - 25	0,3871	0,3668	1000 -1250	0,8852	0,8169
			1250 -1500	0,7318	0,8339
			1500 -1750	0,5792	0,4322
			1750 -2000	0,4258	0,2938
			2000 -2250	0,2732	0,2761
			2250 -2500	0,1198	0,2030

Figura 21 - Eficiência relativa de detecção (ϵ_{ct}) para camadas de 5 ml de amostras radioativas colocadas no tubo de vidro, tomando-se como unitária a eficiência relativa de contagem da camada de 0 a 5 ml.

nessa eficiência de detecção é de aproximadamente 18% a partir da segunda camada, e sendo assim, a eficiência de detecção para a camada de 25 a 30 ml seria aproximadamente 20% e para a camada de 30 a 35 ml seria praticamente desprezível em relação às anteriores. Esta diminuição de eficiência de detecção de cada camada, à medida que se aumenta o volume é devido à geometria de detecção, pois os átomos radioativos afastam-se do fundo do poço do cristal cintilador e a radiação gama emitida na desintegração tem maior chance de não sofrer interação com o detector, e com isto diminuindo a eficiência. Em outras palavras, à medida que se aumenta o volume, diminui o ângulo sólido para interação da radiação gama com o detector.

Com base na equação 62, o fator de geometria relativo ao tubo de vidro (f_t , equação 39) pode ser dado pela equação:

$$f_t = -5,2424.10^{-1}V^{-1} + 1,1944 - 1,7940.10^{-2}V \quad (64)$$

Os valores de f_t em função do volume da amostra no tubo de vidro são mostrados na tabela 6 e visualizados na figura 22. Pela figura observa-se que o fator de geometria, ou seja, a eficiência relativa de detecção (ϵ_{Rt}) diminui com o aumento do volume da amostra radioativa, independentemente da energia da radiação gama.

Como foi mencionado, a eficiência de detecção em tubo de vidro para outros volumes (ϵ_{tV}) pode ser calculada pela equação 40. Substituindo o valor de ϵ_{t5} , dado pela equação 61, e f_t , dado pela equação 64, tem-se:

$$\epsilon_{tV} = (-5,2424.10^{-1}V^{-1} + 1,1944 - 1,7940.10^{-2}V) \cdot (1,08765 + 0,1111 E_Y) \cdot e^{-2,2255 E_Y} \quad (65)$$

A tabela 5 e figura 23 apresentam a eficiência de detecção para alguns radioisótopos em todos os volumes no tubo de vidro, e na figura 15 é mostrada a eficiência de detecção em função da energia da radiação gama, para a detecção em vários volumes dentro do tubo de vidro.

7.3. Eficiência de detecção de radioisótopos em beaker Marinelli

Os espectros de energia obtidos com 2500 ml de solução radioativa no beaker Marinelli são apresentados nas figuras 11 - ^{203}Hg ,

Figura 22 - Fator de geometria (f_t) ou eficiência relativa de detecção (ϵ_{Rt}) em função do volume da amostra (V) colocada em tubo de vidro tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com 5 ml.

Figura 23 - Eficiência de detecção para alguns radioisótopos em tubo de vidro (ϵ_{tV}) em função do volume da amostra (V).

12 - ^{54}Mn , 13 - ^{65}Zn , 16 - ^{131}I , 17 - ^{24}Na e 18 - ^{42}K .

A tabela 8 e figura 24 apresentam os dados da razão R' (equação 44) entre as taxas de contagem líquida obtidas com amostras de mesma atividade no beaker Marinelli - 2500 ml e no tubo de vidro 5 ml. A relação entre R' e a energia da radiação gama (E_γ) é dada pela equação:

$$R' = 0,07897 \cdot e^{0,5039 E_\gamma} \quad (66)$$

$$r = 0,9741 \text{ (sig. 1\%)}$$

Substituindo o valor de R' (equação 66) e ϵ_{t5} (equação 61) na equação 45, tem-se a eficiência de detecção no beaker Marinelli em função da energia da radiação gama, para o volume de 2500 ml:

$$\epsilon_{M2500} = (0,07897 \cdot e^{0,5039 E_\gamma}) \cdot (1,08765 + 0,1111 E_\gamma) \cdot e^{-2,2255 E_\gamma} \quad (67)$$

ou

$$\epsilon_{M2500} = (0,08589 + 0,008774 E_\gamma) \cdot e^{-1,7216 E_\gamma} \quad (68)$$

Os dados das taxas relativas de contagem para os volumes de 250 a 2500 ml, de 250 em 250 ml, são mostrados na tabela 9 e visualizados na figura 25. Nota-se também que as taxas relativas obtidas nos diversos volumes independem da energia da radiação gama, como na detecção em tubo de vidro. Com os valores médios de cada volume, foi obtida uma relação entre a taxa relativa de contagem em função do volume da amostra colocada no beaker Marinelli:

$$CR_V = -6,5168 \cdot 10^{-2} + 8,2494 \cdot 10^{-4} V - 1,6044 \cdot 10^{-7} V^2 \quad (69)$$

$$r^2 = 0,9990 \text{ (sig. 1\%)}$$

Do mesmo modo que o tubo de vidro, pode-se estimar a eficiência relativa de detecção de cada camada de 250 ml adicionada ao beaker Marinelli, tomando-se como unitária a dos primeiros 250 ml. Empregando-se uma equação similar à 63, tem-se:

$$\epsilon_{CM} = \frac{CR_V - CR_{V-250}}{CR_{250}} \quad (70)$$

sendo: ϵ_{CM} = eficiência relativa de detecção no beaker Marinelli

Tabela 8 - Razão (R') entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade, colocadas no beaker Marinelli - 2500 ml e no tubo de vidro - 5 ml, em função da energia da radiação gama (E_γ).

Radioisótopo	Energia da Radiação Gama (E_γ , MeV)	R'
Hg-203	0,279	0,0903
I-131	0,364	0,0937
Mn-54	0,835	0,1162
Mn-56	0,847	0,1372
Zn-65	1,115	0,1277
Na-24	1,368	0,1563
Mn-56	1,811	0,1998

Figura 24 - Razão (R') entre as taxas líquidas de contagem obtidas com amostras de mesma atividade colocadas em beaker Marinelli 2500 ml e em tubos de vidro - 5 ml, em função da energia da radiação gama (E_γ).

Tabela 9 - Taxas relativas de contagem em função do volume da amostra em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com o volume de 2500 ml. E também apresentado o fator de geometria (f_M) relativo ao beaker Marinelli, baseando-se no volume de 2500 ml.

Radio- isótopo	Volume (ml)									
	250	500	750	1000	1250	1500	1750	2000	2250	2500
Hg-203	0,1460	0,3009	0,4756	0,6167	0,7357	0,8297	0,9054	0,9300	0,9664	1,0000
I-131	0,1376	0,2960	0,4265	0,5990	0,7157	0,8430	0,9058	0,9295	0,9572	1,0000
Mn-54	0,1395	0,2886	0,4500	0,5935	0,7139	0,8127	0,8934	0,9425	0,9741	1,0000
Mn-56	0,1390	0,3020	0,4332	0,5947	0,7082	0,8761	0,8858	0,9360	0,9957	1,0000
Zn-65	0,1427	0,2989	0,4632	0,5920	0,7146	0,8138	0,8982	0,9397	0,9751	1,0000
Na-24	0,1405	0,2911	0,4629	0,5894	0,6880	0,8057	0,8580	0,9170	0,9597	1,0000
Média	0,1409	0,2963	0,4579	0,5976	0,7127	0,8302	0,8911	0,9325	0,9714	1,0000
fator de Geometria (f_M) experimental	1,4090	1,4815	1,5263	1,4940	1,4254	1,3837	1,2730	1,1656	1,0793	1,0000
fator de Geometria (f_M) teórico (eq. 71)	1,3178	1,5446	1,5530	1,5068	1,4387	1,3597	1,2745	1,1854	1,0936	1,0000

Figura 25 - Taxa relativa de contagem (média de sete radioisótopos) em função do volume da amostra colocada em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a taxa de contagem obtida com a amostra de 2500 ml.

para camada de 250 ml, compreendida entre o volume de V e V-250 ml.

CR_V , CR_{V-250} e CR_{250} = taxas relativas de contagem devido aos volumes V, V-250 e 250 ml, respectivamente.

Os dados de eficiência de detecção de cada camada de 250 ml são mostrados na tabela 7 e figura 26. Devido à reentrância existente no fundo do beaker Marinelli, as primeiras quatro camadas de 250 ml formam anéis, estando os primeiros 250 ml em volta do cristal cintilador na sua parte inferior, enquanto que os anéis de 250 - 500 e 500 - 750 ml estão mais simétricos ao detector, e o 4º anel (750 - 1000 ml) em volta do detector na sua parte superior. Com base nesta geometria de detecção era de se esperar, portanto, que as 2a. e 3a. camadas, 250 - 500 e 500 - 750 ml, respectivamente, apresentassem valores maiores na eficiência relativa de detecção do que os do 1º e 4º anéis. É também notado que com o aumento de volume a ser detectado, a eficiência relativa de cada camada diminui aproximadamente 15,3% a partir da 2a. camada.

Com base na equação 69, o fator de geometria relativo ao beaker Marinelli (f_M , equação 47) vale:

$$f_M = -1,6384 \cdot 10^2 V^{-1} + 2,0740 - 4,0336 \cdot 10^{-4} V \quad (71)$$

Os valores de f_M em função do volume da amostra no beaker Marinelli são mostrados na tabela 9 e representados na figura 26. Observa-se pela figura que o fator de geometria f_m ou a eficiência relativa de detecção (ϵ_{RM}) tem um comportamento diferente do tubo de vidro. De modo independente da energia da radiação, a eficiência relativa aumenta até aproximadamente 750 ml, diminuindo em seguida.

É mais conveniente para discussão posterior, ter a eficiência relativa tomando-se como unitária a obtida com a amostra de 250 ml. Neste caso a eficiência relativa ϵ'_{RM} é dada pela equação:

$$\epsilon'_{RM} = \frac{\epsilon_{MV}}{\epsilon_{M250}} = \frac{\epsilon_{MV}/\epsilon_{M2500}}{\epsilon_{M250}/\epsilon_{M2500}} = \frac{f_{MV}}{f_{M250}} \quad (72)$$

onde f_{MV} e f_{M250} representam os fatores de geometria para um da-

Figura 26 - Eficiência relativa de detecção (ϵ_{CM}) para camadas de 250 ml de amostras radioativas colocadas em beaker Marinelli, tomando-se unitária a eficiência relativa de contagem da camada de 0 a 250 ml.

do volume $\underline{V}$ e para o volume de 250 ml, calculados de acordo com a equação 47. Como comentado anteriormente, estes fatores f_{MV} e f_{M250} representam, respectivamente, a eficiência relativa de detecção para um dado volume $\underline{V}$ e para o volume de 250 ml, tomando-se como unitária a eficiência de detecção obtida com 2500 ml, e são mostrados na figura 27.

Como já foi mencionado, a eficiência de detecção para outros volumes em beaker Marinelli (ϵ_{MV}) pode ser calculada pela equação 48. Substituindo o valor de ϵ_{M2500} , dado pela equação 68, e f_M , dado pela equação 71, tem-se:

$$\epsilon_{MV} = (-1,6384 \cdot 10^2 V^{-1} + 2,0740 - 4,0336 \cdot 10^{-4} V) \cdot (0,08589 + 0,008774 E_{\gamma}) \cdot e^{-1,7216 E_{\gamma}} \quad (73)$$

A tabela 5 e figura 28 apresentam os valores da eficiência de detecção para alguns radioisótopos em função do volume no beaker Marinelli, e na figura 15 representa-se a eficiência de detecção em função da energia da radiação gama para a detecção em vários volumes no beaker Marinelli.

7.4. Atividade específica mínima detectável

Fixando-se o tempo de detecção para a radiação de fundo (t_F) em 100 e 1000 minutos, foram calculadas as atividades específicas mínimas em função do tempo de detecção da amostra (t_B) para se atingir os coeficientes de variação (CV) de 1 e 10% para diferentes condições de detecção dos radioisótopos ^{203}Hg , ^{131}I , ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{24}Na e ^{42}K . Para detecção em tubo de vidro foram fixados os volumes de 5 e 25 ml, enquanto que na detecção em beaker Marinelli foram os de 500 e 2500 ml. As atividades específicas mínimas nessas condições em função do tempo de detecção da amostra (t_B) e para 100 e 1000 minutos de radiação de fundo, são dadas nas figuras 29 - 34 para coeficiente de variação de 1% e nas figuras 35 - 40 para 10%.

Para radioisótopos emissores de radiação gama de baixa energia (^{203}Hg , por exemplo), para se estimar com coeficiente de variação de 1% em 10 minutos de detecção da amostra e 100 minutos de detecção da radiação de fundo, as atividades específicas necessárias são da ordem de 460 dpm/ml para tubos de vidro de 5 ml ,

Figura 27 - Fator de geometria (f_M) e eficiência relativa de detecção em função do volume da amostra colocada em beaker Marinelli, tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com 2500 ml (ϵ_{RM}). É dada também a eficiência relativa de detecção tomando-se como unitária a eficiência relativa obtida com amostra de 250 ml (ϵ'_{RM}).

Figura 28 - Eficiência de detecção para alguns radioisótopos em beaker Marinelli (ϵ_{MV}) em função do volume da amostra.

Figura 29 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{203}Hg , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 30- Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{131}I em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro e de 500 e 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 31 - Atividade específica mínima (a , dpm/ml) para ^{54}Mn em função do tempo de detecção (t_D , min), para atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro e de 500 e 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 32 - Atividade específica mínima (a, dpm/ml) para ^{65}Zn , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1% para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 33 - Atividade específica mínima (a , dpm/ml) para ^{24}Na em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 34 - Atividade específica mínima (a , dpm/ml) para ^{42}K , em função do tempo de detecção (t_B , min), para se atingir coeficiente de variação de 1%, para amostras de 5 e 25 ml colocada em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 35 - Atividade específica mínima detectável (a , dpm/ml) para ^{203}Hg em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 36 - Atividade específica mínima detectável (a, dpm/ml) para ^{131}I em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 37 - Atividade específica mínima detectável (a, dpm/ml) para ^{54}Mn em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 38 - Atividade específica mínima detectável (a, dpm/ml) para ^{65}Zn em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 39 - Atividade específica mínima detectável (a, dpm/ml) para ^{24}Na em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

Figura 40 - Atividade específica mínima detectável (a, dpm/ml) para ^{42}K em função do tempo de detecção (t_B , min) para se atingir coeficiente de variação de 10%, para amostras de 5 e 25 ml colocadas em tubo de vidro, e de 2500 ml em beaker Marinelli. Tempo de contagem da radiação de fundo $t_F = 100$ e 1000 minutos.

130 dpm/ml para 25 ml e 10 dpm/ml para beaker Marinelli. Em 100 minutos de detecção da amostra, para se atingir o mesmo coeficiente de variação, seriam necessárias 80, 22 e 1,8 dpm/ml, respectivamente, para tubo de vidro 5 e 25 ml, e beaker Marinelli - 2500 ml. Para radioisótopos emissores de raios gama de alta energia (^{42}K , por exemplo), a razão entre as atividades específicas é bem maior que para baixa energia. Considerando-se as mesmas condições anteriores, seriam necessárias 600, 165 e 7,2 dpm/ml para se atingir o coeficiente de variação de 10% com 10 minutos de detecção da amostra e 10 minutos da radiação de fundo. Para 100 minutos de detecção da amostra, as atividades seriam de 210, 58 e 2,4 dpm/ml.

Por outro lado, para amostras de mesmas atividades específicas, o tempo necessário para detecção da amostra para se atingir um determinado coeficiente de variação, é da ordem de 100 vezes menor quando se utiliza o beaker Marinelli - 2500 do que tubo de vidro - 25 ml, como pode ser visto nas figuras 28 - 39, considerando-se o mesmo tempo de detecção de radiação de fundo.

Apesar da eficiência de detecção em beaker Marinelli 2500 ml ser 11,4 a 5,9 vezes menor que do tubo de vidro - 5 ml, ou de 8,3 a 4,3 em relação a 25 ml, na faixa de 0,2 a 1,5 MeV (fig. 15), a atividade específica necessária para atingir os coeficientes desejados são bem menores no beaker Marinelli. Em outras palavras, o baixo valor da eficiência do Marinelli é compensado pelo alto volume empregado na detecção. Isto pode ser evidenciado pelo emprego da equação 55, onde sob as mesmas condições, a razão entre as atividades mínimas para beaker Marinelli e tubo de vidro pode ser dada por:

$$\frac{a_{M2500}}{a_t} = \frac{V_t \cdot \epsilon_t}{V_M \cdot \epsilon_{M2500}} \quad (74)$$

uma vez que a taxa de radiação de fundo é praticamente a mesma para tubo de vidro e beaker Marinelli. Desse modo, em detecção com o beaker Marinelli, na faixa de 0,2 a 1,5 MeV, empregando-se nos mesmos tempos de detecção da amostra e radiação de fundo, consegue-se estimar com mesmo coeficiente de variação, atividades específicas 44 a 84 vezes menores que o tubo de vidro de 5 ml, e de 12 a 23 vezes para 25 ml (figura 41).

Figura 41 - Razão entre as atividades específicas mínimas detectáveis para amostras colocadas em tubo de vidro (a_t , 5 e 25 ml) e beaker Marinelli (a_M , 2500 ml).

Para se detectar amostras de baixa atividade específica, poderia se empregar métodos químicos para concentração do volume da amostra, como por exemplo, resinas trocadoras de íons, precipitação, eletrodeposição, extração por solvente, etc. Neste caso, amostras de grande volume poderiam ser reduzidas para 5 ou 25 ml, aumentando-se a atividade específica e detectando-a posteriormente em tubo de vidro com eficiência maior do que no beaker Marinelli. Em outras palavras, pela redução do volume de 2500 para 5 ou 25 ml, e empregando-se os mesmos tempos de detecção da amostra e radiação de fundo poder-se-ia atingir atividades específicas menores com o mesmo coeficiente de variação. Poder-se-ia atingir 100 ou 500 vezes menor a atividade específica necessária na detecção direta de 25 e 5 ml da solução radioativa em tubos de vidro, respectivamente. Na faixa de 0,2 a 1,5 MeV, poder-se-ia atingir 11,4 a 5,9 vezes menor em relação à detecção direta em beaker Marinelli - 2500 ml, concentrando a amostra para 5 ml, e de 8,3 a 4,3 se a concentração fosse para 25 ml, como mostra a figura 42. Nos valores dados acima, foi considerado não haver perda de radioisótopo no processo químico utilizado, ou seja, foi considerado que o processo químico de concentração tem uma eficiência de 100%.

Considerando que os métodos químicos de redução de volume exigem gastos com drogas, tempo de preparo e manuseio das amostras, talvez fosse aconselhável a detecção por maior tempo diretamente em beaker Marinelli.

Figura 42 - Razão entre as atividades específicas mínimas detectáveis para amostras colocadas diretamente em beaker Marinelli - 2500 ml (a_s) e após extração colocadas em tubos de vidro (a'_s) de 5 ou 25 ml.

8. CONCLUSÕES

Em face da discussão dos resultados obtidos pode-se concluir que:

- 1) a eficiência relativa de detecção para fotopico em função do volume independe da energia da radiação gama, tanto na detecção em tubo de vidro como no beaker Marinelli;
- 2) a eficiência de detecção para amostras de 25 ml colocadas em tubo de vidro é aproximadamente 1,4 vezes menor do que para amostras de 5 ml, independentemente da energia da radiação gama;
- 3) para radioisótopos de energia baixa (^{203}Hg - 0,28 MeV), a eficiência de detecção para amostras de 2500 ml contida em beaker Marinelli é aproximadamente 8 vezes menor que a obtida com 25 ml em tubo de vidro, enquanto que para energia alta (^{42}K - 1,52 MeV) é aproximadamente 4 vezes; com relação a 5 ml em tubo de vidro, é aproximadamente 11 a 6 vezes menor;
- 4) para se atingir um determinado coeficiente de variação o tempo necessário para detecção da amostra quando se emprega beaker Marinelli - 2500 ml é da ordem de 100 vezes menor do que tubo de vidro - 25 ml, considerando-se o mesmo tempo de detecção da radiação de fundo;
- 5) empregando-se mesmos tempos de detecção da amostra e radiação de fundo, na detecção de 2500 ml da amostra em beaker Marinelli, as atividades específicas necessárias são 44 a 84 vezes menores do que em tubos de vidro de 5 ml, na faixa de 0,2 a 1,5 MeV, independentemente do coeficiente de variação desejado; com relação ao tubo de vidro contendo 25 ml, pode-se atingir atividades específicas 12 a 23 vezes menores;
- 6) empregando-se métodos químicos para concentração do radioisótopo, com eficiência de 100%, reduzindo-se o volume da amostra de

2500 para 25 ml, pode-se atingir atividades específicas 8,3 a 4,3 vezes menores do que a detecção direta em beaker Marinelli, na faixa de 0,2 a 1,5 MeV; reduzindo-se o volume para 5 ml, poder-se-ia atingir níveis 11,4 a 5,9 vezes menores.

9. SUMMARY: MINIMUM DETECTABLE ACTIVITY FOR RADIOISOTOPE GAMMA-RAY EMITTERS IN AQUEOUS SAMPLES

The photopeak detection efficiency was determined for aqueous samples from 5 ml to 25 ml in glass tubes and from 250 ml to 2500 ml in Marinelli beakers, as a function of gamma-ray energy within the 0.2 to 1.5 MeV range, for a 3 x 3" well type (7/8" diameter x 1 1/2" depth) NaI (Tl) scintillator crystal.

The detection efficiency for samples of 25 ml in glass tubes was 1.4 times lower than that found for samples of 5 ml, independently of the gamma-ray energy. In Marinelli beakers, samples of 2500 ml and 500 ml showed similar results.

Within the gamma-ray energy range studied, the detection efficiency in Marinelli beakers of 2500 ml is from 8 to 4 times lower than that for detection in glass tubes of 25 ml, and from 11 to 6 times lower in relation to the glass tube of 5 ml.

The Marinelli beaker lower detection efficiency when compared with the glass tube is compensated by the larger volume used in the measurement of this radioisotope activity. Based on the same background radiation times, the time necessary for detection of the sample in a Marinelli beaker of 2500 ml to achieve a given variation coefficient, is of the order of 100 times lower than that achieved with a glass tube of 25 ml.

The specific activity needed to achieve a given variation coefficient is from 44 to 84 times lower when using a Marinelli beaker of 2500 ml instead of a glass tube of 25 ml, with the same times for

sample detection and back-ground radiation in both techniques. When comparing detection in a Marinelli beaker of 2500 ml with that in a glass tube of 25 ml, the ratio is 12 to 23 times.

The use of chemical methods with 100% extraction efficiency to reduce the sample volume would be advantageous for radioisotopes which are low energy gamma-ray emitters. The volume reduction from 2500 to 25 ml, in the 0.2 to 1.5 MeV range, would reach specific activities 8.3 to 4.3 times lower than the direct detection in a Marinelli beaker of 2500 ml; if the volume is reduced to 5 ml, it can be 11.4 to 5.9 times lower than direct detection.

10. LITERATURA CITADA

- ADAMS, J.A.S. e P. GASPARINI, 1970. *Gamma-ray Spectrometry for Rocks*. Series Methods: - Geochemistry and Geophysics, vol. 10, Elsevier Publishing Co., 295 p.
- BARATTA, E.J. e F.E. KNOWLES, Jr. 1973. Gamma spectroscopy determination of Cesium-137 in milk, using simultaneous equations: collaborative study. *Journ. of the AOAC*, Baltimore, 56: 204-207.
- BERGER, C.D. e R.E. GOANS, 1979. A rapid method of ^{131}I detection in milk. *Health Phys.*, New York, 37: 783-784.
- BRAUER, F.P.; J.H. KAYE e R.E. CONNALLY, 1970. X-ray and beta-gamma coincidence spectrometry applied to radiochemical analysis of environmental samples. *Adv. in Chemistry Series*, nº 93 - Radioisotopes in the Environmental, p. 231-253.
- BRAUER, F.P.; J.H. KAYE; J.E. FAGER; W.A. MITZCAFF e H.G. RIECK, Jr., 1972. A dual Ge(Li)-dual NaI(Tl) gamma-ray spectrometer. *Nucl. Instr. Meth.*, Amesterdão, 102: 223-235.
- BRAUER, F.P.; J.H. KAYE e J.E. FAGER, 1975. NaI(Tl)-Ge(Li) coincidence gamma-ray spectrometry for radionuclide analysis of environmental samples. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Piscataway, NS-22: 661-670.
- CHISTALLER, G., 1967. Experimental peak-total ratio of an 4 x 4" NaI(Tl) crystal. *Nucl. Instr. Meth.*, Amesterdão, 50: 173-175.

- COLBY Jr., L.J. e J.W. COBBLE, 1959. Precision calibration of large 4π scintillation crystals for routine gamma counting. *Nucleonics*, Nova Iorque, 31: 789-799.
- COSTRELL, L.; C. SANDERSON; D.E. PERSYK; G. WALFORD e F.J. WALTER, 1980. Germanium semiconductor detector efficiency determination using a standard Marinelli (reentrant) beaker geometry. *Health Phys.*, Nova Iorque, 38: 229-232.
- CROUTHAMEL, C.D.; F. ADAMS e R. DAMS, 1975. *Applied Gamma-Ray Spectrometry*. Nova Iorque, Pergamon Press, 752 p.
- GUNNINK, R. e A.W. STONER, 1961. Photopeak counting efficiencies for 3 x 3 inch solid and well-type NaI scintillation crystals. *Anal. Chem.*, Washington, 33: 1311-1313.
- GUSTAFSON, P.F. e S.S. BRAR, 1964. Measurement of gamma-emitting radionuclides in soil and calculation of the dose arising therefrom. In: ADAMS, J.A.S., e W.W. LOWDER, eds. *The Natural Radiation Environment*. Chicago, The University of Chicago Press, p. 449-512.
- HANSEN, R.O., 1970. Radioactivity of a California terrace soil. *Soil Sci.*, Baltimore, 110: 31-36.
- HANSEN, R.O. e G.L. HUNTINGTON, 1969. Thorium movements in morainal soils of High Sierra. *Soil Sci.*, Baltimore, 108: 257-265.
- HEATH, R.L., 1962. *Scintillation Spectrometry Gamma-Ray Spectrum Catalogue*. Idaho Falls, Philips Petroleum Company, Atomic Energy Division, IDO - 16408.
- HEATH, R.L., 1964. *Scintillation Spectrometry*. Vol. 2, 2nd. Edition, IDO-16880 - 2. Idaho Operations Office.
- HILL, R.F.; G.J. HINE e L.D. MARINELLI, 1950. The quantitative determination of gamma-ray radiation in biological research. *Amer. J. Roent. Radium Therapy and Nucl. Med.*, Wiston-Salem, 63:160-169.

- HOLMBERG, P. e R. RIEPPO, 1973. Monte Carlo calculations of efficiency values for well-type NaI - detectors with self-absorption in the source. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 24: 99-105.
- HOLMBERG, P. e R. RIEPPO, 1977. The effect of well dimensions on the efficiency values for well-type NaI - detectors. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 28: 469-472.
- HORWITZ, W., 1975. *Official Methods of Analysis of the Association of Official Analytical Chemists*. Washington, 12a. edição, 1094 p.
- HUNT, G.J.; M.C. O'RIORDAN e P.D.J. WHETMATH, 1978. An anti-coincidence-shielded Ge(Li) gamma-ray spectrometer with high sensitivity for measurement of environmental radionuclides. *Nucl. Instr. Meth.*, Amesterdão, 156: 573-589.
- IDDINGS, F.A.; T.J. LIEBER e O.W. WILLIAMS, 1979. Counting yield calibration of NaI(Tl) detectors for complex geometry samples by use of Californium-252. *J. Radioanal. Chem.*, Amesterdão, 50:125-131.
- LAZAR, N.H.; R.C. DAVIS e P.R. BELL, 1956. Peak efficiency of NaI. *Nucleonics*, Nova Iorque, 14: 52.
- LLOYD, R.D.; R.L. AAMODT; W.W. WAGNER e R.C. PENDLETON, 1968. Calibration of a gamma-ray spectrometer for soils counting. *Intern. J. Appl. Rad. Isotop.*, Nova Iorque, 19: 773-775.
- MENZEL, R.G., 1968. Uranium, Radium and Thorium content in phosphate rocks and their possible radiation hazard. *J. Agr. Food Chem.*, Washington, 16: 231-234.
- MONTANHEIRO, M.N.S.; V.F. NASCIMENTO Fº e F.A. PINTO, 1977. Introdução à espectrometria gama. BD-021, CENA, Piracicaba, 37 p.
- MULLER, C.J. e F.J. HAASBROEK, 1969. Determination of total potassium in soil by means of radiometric analysis. *Agrochemophysics*, Johanesburgo, 1: 97-98.

- NASCIMENTO FQ, V.F., 1977. Características físicas dos principais radioisótopos utilizados em ciências biológicas. BT-009, CENA. Piracicaba, 8 p.
- NEW ENGLAND NUCLEAR, 1977. Certificate of radioactivity and calibration: ^{57}Co , ^{133}Cs , ^{54}Mn and ^{60}Co references sources. Boston, Massachusetts, 5 p.
- NIELSEN, J.M. e H.A. KORNBERG, 1965. Multidimensional gamma-ray spectrometry and its use in biology. In: IAEA, ed., *Radioisotope Sample Measurement Techniques in Medicine and Biology*. Viena, p. 3-15.
- NIELSEN, J.M. e R.W. PERKINS, 1967. Anticoïncidence shielded multidimensional gamma-ray spectrometers for low level counting. In: IAEA, ed., *Radioactive Dating and Methods of Low Level Counting*. Viena, p. 687-702.
- PRICE, W.J., 1958. *Nuclear Radiation Detection*. Nova Iorque, McGraw Hill, 382 p.
- RIEPPPO, R.; K. BLOMSTER e P. HOLMBERG, 1975. Calculated 10-150 keV gamma-ray efficiency values for well-types NaI-detectors. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 26: 558-561.
- RIEPPPO, R. e K. BLOMSTER, 1976. Calculated absolute photopeak efficiency values for 3 x 3" NaI - detector with cylindrical source geometry. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 27: 365-367.
- SONNTAG, C., 1967. Extremely low level scintillation spectrometer. In: IAEA, ed., *Radioactive Dating and Methods of Low Level Counting*. Viena, p. 675-685.
- TAKAGI, S.; M. FUKUSHIMA e H. KOYAMA, 1978. Determination of extremely low-level radioiodine in milk. *J. Nucl. Sci. Techn.*, Tóquio, 15: 145-151.
- TALIBUDEEN, O. e Y. YAMADA, 1966. Total potassium in soils by radioactivity measurements. *J. Soil Sci.*, Londres, 17: 107-120.

- VASSILAKY, M.; L. SALMON e J.A.B. GIBSON, 1965. Measurement of radioactivity in soil. AERE-R 4996, Harwell.
- VERHEIJKE, M.L., 1962. Calculated efficiencies of a 3 x 3" NaI(Tl) well-type scintillation crystal. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 13: 583-585.
- VERHEIJKE, M.L., 1970. Calculated efficiencies of NaI(Tl) scintillation crystals for Marinelli beakers with aqueous sources. *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes*, Nova Iorque, 21: 119-126.
- WARD, G.M.; J.E. JOHNSON e D.L. WHELAN, 1968. Detection of Cesium-137 and related sampling problems of dairy cattle feeds, 1962-1967. *Journ. of the AOAC*, Baltimore, 51: 792-796.
- WATT, D.E. e D. RAMSDEN, 1964. *High Sensitivity Counting Techniques*. Nova Iorque, MacMillan Co., 348 p.
- WOGMAN, N.A., 1976. Current methods for laboratory analysis of environmental levels of radioactivity. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Piscataway, NS-23: 1214-1223.
- WOGMAN, N.A.; R.W. PERKINS e J.H. KAYE, 1969. An all sodium iodide anticoincidence shielded multidimensional gamma-ray spectrometer for low-activity samples. *Nucl. Instr. Meth.*, Amesterdão, 74: 197-212.