AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

# METODOLOGIA DE AQUISIÇÃO DE DADOS E ANÁLISE POR SOFTWARE, PARA SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS 4πβ-γ E SUA APLICAÇÃO NA PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS, COM ÊNFASE EM TRANSIÇÕES METAESTÁVEIS

**Franco Brancaccio**

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

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

**São Paulo**
**2013**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**
**Autarquia associada à Universidade de São Paulo**

# Metodologia de Aquisição de Dados e Análise por Software, para Sistemas de Coincidências 4πβ-γ e sua Aplicação na Padronização de Radionuclídeos, com Ênfase em Transições Metaestáveis

**Franco Brancaccio**

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

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

**Versão Corrigida**
**Versão Original disponível no IPEN**

**São Paulo**
**2013**

# DEDICATÓRIA

**A minha esposa Rosangela e a meu filho Rafael**

**A meus pais Michele (em memória) e Eva**

**A também meus pais Edison e Nancy**

# AGRADECIMENTOS

Expresso meu sincero reconhecimento a todos que contribuíram para o desenvolvimento deste trabalho, a quem considero mais do que colegas e amigos. Agradeço ao ***Criador*** que nos fez irmãos e nos reuniu. Para representar esta família fraternal, faço alguns agradecimentos especiais:

Dr. Mauro da Silva Dias, orientador paciente e dedicado, cujas ideias e realizações brilhantes constituem a essência do projeto aqui concretizado.

Dra. Marina Fallone Koskinas, pelo apoio e incentivo constantes, pelo fornecimento das amostras e dados para as análises e pela inestimável sugestão e viabilização das medidas da amostra de európio.

MSc. Fábio de Toledo que, com empenho e dedicação, desenvolveu o sistema de aquisição de dados para as medidas de coincidências, SCS.

Drs. André Luís Lapolli, Mario Olímpio de Menezes e Vitor Vivolo, que acompanharam o desenvolvimento do trabalho, com inestimáveis sugestões.

Dr. Tufic Madi Filho e Dr. José Mestnik Filho, por suas palavras de estímulo.

Aos colegas do LMN, Ione Makiko Yamazaki e Osvaldo Cordeiro Alípio, pela amizade e pelo auxílio nas tarefas do laboratório.

Eng. Carlos Alberto Loyola, pelo empréstimo do gerador de sinais de alta precisão Agilent, para realização de ensaios com o sistema de aquisição (SCS).

Dr. Maurício Moralles pelas sugestões e auxílio na análise estatística e no processo de ajuste para a determinação das probabilidades de emissão gama do gálio.

Dr. Mauro Noriaki Takeda, criador do programa ESQUEMA.

Aos amigos do CRPq e do extinto setor de Eletrônica do IPEN.

A todos do departamento de Ensino do IPEN.

Aos Srs. Daniel Carvalho e Daniel Pryjma, da Wolfram Research, Inc., pelo curso e disponibilização gratuita do software Mathematica. Também a Rose Nowac do CCE-USP, por esclarecimentos sobre o download da versão oficial do Mathematica.

À minha esposa Rosangela, pelo incentivo constante, e a meu filho Rafael, pelas proveitosas trocas de ideias e sugestões na área de programação.

Ao IPEN, representado por seu superintendente, José Carlos Bressiani, pela oportunidade desta realização.

# Metodologia de Aquisição de Dados e Análise por *Software*, para Sistemas de Coincidências 4πβ-γ e sua Aplicação na Padronização de Radionuclídeos, com Ênfase em Transições Metaestáveis

**Franco Brancaccio**

## RESUMO

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) desenvolveu recentemente o Sistema de Coincidência por *Software* (SCS), para a digitalização e registro dos sinais de seus sistemas de coincidências 4πβ–γ utilizados na padronização de radionuclídeos. O sistema SCS possui quatro entradas analógicas independentes que possibilitam o registro simultâneo dos sinais de até quatro detectores (vias β e γ). A análise dos dados é realizada *a posteriori*, por *software*, incluindo discriminação de amplitudes, simulação do tempo-morto da medida e definição do tempo de resolução de coincidências. O *software* então instalado junto ao SCS estabeleceu a metodologia básica de análise, aplicável a radionuclídeos com decaimento simples, como o $^{60}$Co. O presente trabalho amplia a metodologia de análise de dados obtidos com o SCS, de modo a possibilitar o uso de detectores com alta resolução em energia (HPGe), para padronização de radionuclídeos com decaimentos mais complexos, com diferentes ramos de decaimento ou com transições metaestáveis. A expansão metodológica tem suporte na elaboração do programa de análise denominado *Coincidence Analyzing Task* (CAT). A seção de aplicação inclui as padronizações do $^{152}$Eu (diferentes ramos de decaimento) e do $^{67}$Ga (nível metaestável). A padronização do $^{152}$Eu utilizou uma amostra de uma comparação internacional promovida pelo BIPM (*Bureau International des Poids et Mesures*), podendo-se comparar a atividade obtida com o valores de laboratórios mundialmente reconhecidos, de modo a avaliar e validar a metodologia desenvolvida. Para o $^{67}$Ga, foram obtidas: a meia-vida do nível metaestável de 93 keV, por três diferentes técnicas de análise do conjunto de dados ($\beta_{pronto}$-$\gamma_{atrasado\text{-}HPGe}$, $\beta_{pronto}$-$\gamma_{atrasado\text{-}NaI}$ e $\beta_{pronto}$-$\beta_{atrasado}$); as atividades de cinco amostras, normalizadas por Monte Carlo e as probabilidades de emissão gama por decaimento, para nove transições.

# Data Acquisition with Software Analysis Methodology for 4πβ-γ Coincidence Systems and Application in Radionuclide Standardization, with Emphasis on Metastable Transitions

**Franco Brancaccio**

## ABSTRACT

The Nuclear Metrology Laboratory (LMN) at the Nuclear and Energy Research Institute (IPEN – São Paulo, Brazil) has recently developed the Software Coincidence System (SCS), for the digitalization and recording of signals from its 4πβ–γ detection systems. SCS features up four independent analog inputs, enabling the simultaneous recording of up four detectors (β and γ). The analysis task is performed *a posteriori*, by means of specialized software, including the setting up of energy discrimination levels, dead-time and coincidence resolution time. The software initially installed was able to perform a basic analysis, for the standardization of simple decay radionuclides, such as $^{60}$Co. The present work improves the SCS analysis methodology, in order to enable the use of high resolution detectors (HPGe), for standardization of complex decay radionuclides, including metastable transitions or different decay branches. A program called Coincidence Analyzing Task (CAT) was implemented for the data processing. The work also includes an application section, where the standardization results of $^{152}$Eu (different decay branches) and $^{67}$Ga (with a metastable level) are presented. The $^{152}$Eu standardization was considered for the methodology validation, since it was accomplished by the measurement of a sample previously standardized in an international comparison sponsored by the BIPM (*Bureau International des Poids et Mesures*). The activity value obtained in this work, as well as its accuracy, could be compared to those obtained by important laboratories in the world. The $^{67}$Ga standardization includes the measurement of five samples, with activity values normalized by Monte Carlo simulation. The 93 keV metastable level half-life and the gamma emission probabilities per decay for nine transition of $^{67}$Ga are also presented. The metastable half-life was obtained by three different methods: $\beta_{prompt}$-$\gamma_{delayed\text{-}HPGe}$, $\beta_{prompt}$-$\gamma_{delayed\text{-}NaI}$ and $\beta_{prompt}$-$\beta_{delayed}$.

## SUMÁRIO


**1 INTRODUÇÃO ..... 1**

1.1 Objetivos ..... 2

1.2 Estrutura do Trabalho ..... 3

**2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS ..... 5**

2.1 Decaimento Radioativo ..... 5

2.1.1 Decaimento $\beta^-$ ..... 6

2.1.2 Decaimento $\beta^+$ ..... 7

2.1.3 Decaimento por Captura Eletrônica ..... 8

2.1.4 Transição entre Estados de Energia ..... 9

2.1.5 Grandezas do Decaimento Radioativo ..... 10

2.2 Interação da Radiação com a Matéria ..... 11

2.2.1 Interação de Partículas Eletricamente Carregadas ..... 13

2.2.2 Interação de Fótons ..... 13

2.2.3 Interação de Partículas Eletricamente Neutras ..... 14

2.3 Detecção das Radiações ..... 14

2.3.1 Princípios da Detecção ..... 15

**3 METODOLOGIA DE COINCIDÊNCIA ..... 17**

3.1 Teoria e Técnicas da Metodologia de Coincidência ..... 17

3.1.1 Metodologia Base ..... 18

3.1.2 Metodologia Generalizada ..... 18

3.1.2.1 Método da Extrapolação Linear da Eficiência ..... 20

3.1.2.2 Metodologia para dois Ramos de Decaimento ..... 23

3.1.2.3 Metodologia para Transições Metaestáveis ..... 25

3.2 Sistemas de Medida de Coincidências Encontrados na Literatura ..... 26

3.2.1 Sistemas de Medida de Coincidências Convencionais ..... 27

3.2.1.1 Sistema Convencional com Contadores do LMN ..... 27

3.2.1.2 Sistema Convencional com Módulo TAC do LMN ..... 28

3.2.2 Sistemas de Medida de Coincidências

com Técnicas de Análise por *Software* ..... 30

3.2.2.1 Sistema de Coincidência Digital: DCC ..... 31

3.2.2.2 Sistema de Contagem de Coincidência

por *Software*: SCC ..... 32

3.2.2.3 Sistema de Coincidência por *Software*

Desenvolvido no LMN: SCS ..... 34

**4 METODOLOGIA DE ANÁLISE POR *SOFTWARE* ..... 39**

4.1 Infraestrutura ..... 39

4.1.1 Equipamentos ..... 40

4.1.2 *Software* ..... 46

4.1.3 Amostras Radioativas ..... 46

4.2 Desenvolvimento de Algoritmos para a Análise por *Software* ..... 47

4.2.1 Discriminação de Amplitude:

*Software Amplitude Discrimination* – SAD ..... 47

4.2.2 Tempo-Morto: *Software Dead Time* – SDT ..... 50

4.2.3 Contagem de Eventos Efetivos de Detecção ..... 51

4.2.4 Contagem de Eventos Coincidentes:

*Coincidence Counting Algorithm* – CCA ..... 52

4.3 Programa *Coincidence Analyzing Task* – CAT ..... 55

4.3.1 Funcionalidade do Programa CAT ..... 55

4.3.1.1 Ciclo de Análise e Análise Completa ..... 58

4.3.1.2 Processamento Final e Correções ..... 61

4.3.2 Classes e Hierarquias ..... 61

4.3.2.1 Biblioteca de Hierarquia de Classes *Quantity* ..... 62

4.3.2.2 Biblioteca de Descritores e Hierarquia de Elementos e Sistemas ..... 65

4.3.2.3 Biblioteca: dos Elementos Químicos às Amostras Radioativas ..... 66

4.3.2.4 Classes Principais do Programa CAT ..... 68

4.4 Outros Métodos de *Software* Utilizados na Análise ..... 70

4.4.1 Simulação por Monte Carlo ..... 71

4.4.2 Métodos de Ajuste de Dados Experimentais ..... 72

4.5 Aplicação da Metodologia nas Padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga ..... 73

4.5.1 Padronização do $^{152}$Eu ..... 74

4.5.2 Padronização do $^{67}$Ga ..... 77

4.5.2.1 Meia-Vida do Nível Metaestável de 93 keV ..... 80

4.5.2.2 Atividade Normalizada por Monte Carlo ..... 83

4.5.2.3 Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento ..... 84

**5 RESULTADOS ..... 87**

5.1 Padronização do $^{152}$Eu ..... 87

5.2 Padronização do $^{67}$Ga ..... 91

5.2.1 Meia-Vida da Transição de 93 keV ..... 91

5.2.1.1 Avaliação de Prováveis Contribuições para a Incerteza .. 91

5.2.1.2 Distribuições de Coincidências e Ajustes ..... 93

5.2.2 Atividade Normalizada por Monte Carlo ..... 95

5.2.3 Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento ..... 103

**6 CONCLUSÕES ..... 109**

**ANEXO A – Programa de Aquisição de Dados de SCS ..... 112**

**ANEXO B – Programação OOP e Simbologia UML dos Diagramas de Classes ... 114**

**GLOSSÁRIO ..... 115**

**Referências Bibliográficas ..... 120**

# LISTA DE TABELAS

**TABELA 3.1 – Fragmento de arquivo de dados obtido com SCS, formado por registros de dois campos: Instante e Altura de pulso [incerteza].** ..... 37

**TABELA 4.1 – Ramos de decaimento, energias $\gamma$ utilizadas e pares de análise.** ..... 75

**TABELA 4.2 – Identificação de amostras de $^{67}$Ga e dados de medida (SCS).** ..... 77

**TABELA 5.1 – Atividades obtidas por Monte Carlo para o $^{152}$Eu e parâmetros de ajuste para nove combinações de dados experimentais.** ..... 87

**TABELA 5.2 – Contribuições para a incerteza da atividade final do $^{152}$Eu.** ..... 88

**TABELA 5.3 – Atividade do $^{152}$Eu (kBq g$^{-1}$) comparada a valores obtidos por Monte Carlo e por outros laboratórios.** ..... 89

**TABELA 5.4 – Resultados dos ajustes para cada amostra em três diferentes métodos de análise e meia-vida obtida para o nível metaestável do $^{67}$Ga.** ..... 94

**TABELA 5.5 – Valores finais da meia-vida do nível metaestável do $^{67}$Ga obtidos neste trabalho e valores de literatura.** ..... 95

**TABELA 5.6 – Valores de atividade das amostras de $^{67}$Ga, atividade média e matriz de correlação.** ..... 102

**TABELA 5.7 – Contribuições parciais consideradas na propagação da incerteza total na atividade.** ..... 103

**TABELA 5.8 – Parâmetros de eficiência do detector REGe e matriz de covariância correspondente ao ajuste polinomial de quinto grau em escala log-log.** ..... 105

**TABELA 5.9 – Probabilidades de emissão $\gamma$ por decaimento ($\times$100) obtidas para o $^{67}$Ga e matriz de correlação.** ..... 105

**TABELA 5.10 – Probabilidades de emissão $\gamma$ por decaimento ($\times$100) obtidas para o $^{67}$Ga e comparadas a valores de literatura.** ..... 107

# LISTA DE FIGURAS

**FIGURA 2.1 – Processo de decaimento $\beta^-$ puro. ..... 6**

**FIGURA 2.2 – Processo de decaimento $\beta^+$ puro. ..... 7**

**FIGURA 2.3 –** Processo **de decaimento por captura eletrônica. ..... 8**

**FIGURA 2.4 – Esquemas das transições por emissão $\gamma$**
**e por conversão interna (IC). ..... 9**

**FIGURA 3.1 – Curva de extrapolação da padronização de uma amostra de $^{133}$Ba**
**com normalização por Monte Carlo. ..... 22**

**FIGURA 3.2 – Diagrama em blocos do sistema de medida de coincidências**
**convencional com contadores instalado no LMN. ..... 28**

**FIGURA 3.3 – Sistema de medida convencional**
**com módulo TAC instalado no LMN. ..... 28**

**FIGURA 3.4 – Espectro de contagens típico obtido com sistema TAC. ..... 29**

**FIGURA 3.5 – Sistema DCC:**
**(a) diagrama em blocos simplificado;**
**(b) esquematização da técnica de amostragem de sinais**
**e armazenamento de informações. ..... 31**

**FIGURA 3.6 – Diagrama em blocos de SCC, composto por módulos**
**convencionais e unidade de aquisição de dados**
**conectada a um computador pessoal (PC). ..... 33**

**FIGURA 3.7 – Diagrama em blocos do Sistema de Coincidência por *Software*,**
**SCS, desenvolvido no LMN. ..... 35**

**FIGURA 3.8 – Estruturas dos registros, dos blocos de registros**
**e do arquivo de dados. ..... 37**

**FIGURA 4.1 – Equipamentos para produção de fontes radioativas do LMN. ..... 41**

**FIGURA 4.2 – Espectrômetro gama de germânio hiperpuro (REGe) do LMN,**
**com alta resolução em energia (REGe). ..... 42**

**FIGURA 4.3 – Arranjos de detecção do LMN, para medidas de coincidências. ..... 43**

**FIGURA 4.4 – Eletrônica modular e sistemas convencionais de coincidências. ..... 44**

**FIGURA 4.5 – SCS: Sistema de Coincidência por *Software* desenvolvido no LMN. ..... 45**

**FIGURA 4.6 – Leitura e seleção de pulsos por amplitude (algoritmo SAD). ..... 48**

**FIGURA 4.7 – Tempo-morto virtual da medida, SDT, produzido por *software*. .... 50**

**FIGURA 4.8 – Fluxo simplificado de seleção e contagem de pulsos efetivos. ..... 51**

**FIGURA 4.9 – Algoritmo de dois laços para contagem de eventos β e γ coincidentes. ..... 52**

**FIGURA 4.10 – Diagrama para contagem de eventos β e γ coincidentes, CCA, desenvolvido neste trabalho. ..... 54**

**FIGURA 4.11 – Exemplo de arquivo de configuração de medida e análise utilizado pelo programa CAT. ..... 57**

**FIGURA 4.12 – Ciclo de análise de dados do programa CAT, desenvolvido neste trabalho. ..... 58**

**FIGURA 4.13 – Programa CAT em modo iterativo, com a execução do ciclo de análise para cada combinação de faixas de interesse e de tempo-morto. ..... 59**

**FIGURA 4.14 – Diagrama em blocos do sistema de medida virtual CAT. ..... 60**

**FIGURA 4.15 – Diagrama de classes da biblioteca de quantidades físicas. ..... 64**

**FIGURA 4.16 – Diagrama de classes da biblioteca de descritores e sistemas. ..... 65**

**FIGURA 4.17 – Diagrama de classes da biblioteca de elementos químicos às amostras radioativas. ..... 66**

**FIGURA 4.18 – Diagramas das classes auxiliares, *IsotopeX* e *Isotopes*, e da classe *IsotopesTable* da biblioteca de elementos químicos e de amostras radioativas. ..... 67**

**FIGURA 4.19 – Diagramas das principais classes do programa CAT. ..... 68**

**FIGURA 4.20 – Esquema de decaimento simplificado do $^{152}$Eu, com destaque às emissões γ utilizadas na análise biparamétrica. ..... 76**

**FIGURA 4.21 – Esquema de decaimento do $^{67}$Ga,**
**com destaque às emissões $\gamma$ utilizadas nas análises. ..... 79**

**FIGURA 4.22 – Distribuições de tempos de coincidências para o $^{67}$Ga,**
**considerando os eventos prontos de 184 keV**
**e os atrasados de 93 keV. ..... 81**

**FIGURA 5.1 – Espectros de amplitudes para o $^{152}$Eu**
**obtidos com o programa CAT. ..... 90**

**FIGURA 5.2 – Distribuições de tempos de coincidências atrasadas**
**obtidas com a amostra #14826. ..... 93**

**FIGURA 5.3 – Diagrama esquemático do Arranjo de Detecção #1 do Sistema de**
**Coincidência do LMN,**
**obtido com o código VISED-MCNP5. ..... 96**

**FIGURA 5.4 – Curvas de extrapolação da amostra #14821,**
**obtidas para os valores de 3 e 99 $\mu$s de tempo-morto,**
**e curva teórica de Monte Carlo normalizada. ..... 97**

**FIGURA 5.5 – Espectros de deposição de energia $\beta$ obtidos para duas amostras**
**e por simulação de Monte Carlo. ..... 98**

**FIGURA 5.6 – Curvas de extrapolação normalizadas por Monte Carlo**
**obtidas para as amostras** #14823 e #14826**. ..... 99**

**FIGURA 5.7 – Dois métodos de discriminação eletrônica:**
**SAD e SAD modificado. ..... 101**

**FIGURA 5.8 – Curva de calibração em energia para o detector REGe. ..... 104**

**FIGURA 5.9 – Resíduos percentuais entre valores experimentais**
**e dados ajustados para as eficiências do detector REGe. ..... 104**

**FIGURA 5.10 – Processo de decomposição do dubleto $\gamma$ 91/93 keV, por ajuste**
**de duas gaussianas e um polinômio de grau três para BG. .... 106**

**FIGURA 5.11 – Espectros de amplitudes típicos,**
**obtidos para o $^{67}$Ga com dados CAT. ..... 108**

**FIGURA A1 – Painel de controle do programa de aquisição de SCS (LabVIEW). ..... 112**

**FIGURA A2 – Diagrama em blocos do programa de aquisição de SCS (LabVIEW). ..... 113**

**FIGURA A.3 – Simbologia UML adotada nos diagramas de classes, para as relações de especialização, agregação e composição. ..... 114**

# ABREVIATURAS, ACRÔNIMOS, SIGLAS E SÍMBOLOS

Os elementos desta seção estão separados em categorias, para facilitar a consulta. As siglas podem ser utilizadas no texto para substituir as expressões que representam, aqui grafadas em negrito. As expressões e formas reduzidas utilizadas estão enumeradas no glossário, ao final deste trabalho.

**A) Instituições, Departamentos ou Áreas de Atuação**

ANSTO Do inglês, ***Australian Nuclear Science and Technology Organisation*** (Organização Australiana de Ciência Nuclear e Tecnologia): Instituição pública australiana de pesquisa e suporte e ensino na área nuclear.

BIPM Do francês, ***Bureau International des Poids et Mesures*** (Escritório Internacional de Pesos e Medidas): laboratório permanente e centro mundial de metrologia situado na França, uma das três entidades estabelecidas para manter o SI, junto a CGPM e CIPM.

CGPM Do francês, ***Conference Générale des Poids et Mesures*** (Conferência Geral de Pesos e Medidas): conferência intergovernamental de delegados oficiais com autoridade suprema sobre as ações relacionadas ao SI.

CIPM Do francês, ***Comité International des Poids et Mesures*** (Comitê Internacional de Pesos e Medidas): cientistas e metrologistas que preparam e executam as decisões do CGPM, responsáveis pela supervisão do BIPM.

CRPq **Centro de Reator de Pesquisas** do IPEN.

IPEN **Instituto de Pesquisa Energéticas e Nucleares**, pertencente à **Comissão Nacional de Energia Nuclear, São Paulo** (IPEN-CNEN/SP).

LMN **Laboratório de Metrologia Nuclear**, departamento do IPEN, local de realização deste trabalho.

NPL Do inglês, ***National Physical Laboratory*** (Laboratório Nacional de Física): Centro de excelência em medidas, materiais e ciências do Reino Unido.

SI Do francês, ***Le Système international d'unités*** (Sistema Internacional de Unidades): conjunto de padrões e unidades das medidas, estabelecidos internacionalmente com base na definição do metro (Sistema métrico).

**B) Física das Radiações**

| | |
|---|---|
| $\alpha$ | Coeficiente de Conversão Interna;<br>Partícula alfa, emitida pelo núcleo atômico no processo de decaimento, ou desintegração radioativa (decaimento alfa); corresponde ao núcleo de um átomo de hélio ($^{4}_{2}He^{2+}$). |
| $\beta^-$ | Partícula beta negativa, equivalente a um elétron, emitida pelo núcleo atômico no processo de decaimento beta negativo. |
| $\beta^+$ | Idem, beta positiva. |
| $\gamma$ | Transição em que o núcleo perde energia por emissão de fótons. |
| CE | Do inglês, *Conversion Electron* (Elétron de Conversão Interna): elétron orbital emitido no processo de Conversão Interna (IC), dando origem a uma lacuna. |
| EC | Do inglês, ***Electron Capture*** (Captura Eletrônica): processo de decaimento em que o núcleo instável captura um elétron orbital, produzindo uma lacuna; substitui ou compete com dada probabilidade com a emissão $\beta^+$. |
| IC | Do inglês, ***Internal Conversion*** (Conversão Interna): processo de transição energética que ocorre em lugar da emissão gama, substituindo-a, com dada probabilidade. |
| X | Raios X: emissão de fótons em vários processos, com origem na eletrosfera. |

**C) Detecção das Radiações**

| | |
|---|---|
| $4\pi\beta$ | **Contador Proporcional em geometria de detecção 4π**, utilizado como detector beta (gás fluente ou sob pressão). |
| $4\pi\beta$-$\gamma$ | **Arranjo de detecção para medidas de coincidências**. |
| HPGe | Do inglês, ***High Purity Germanium Detector***: Detector gama de germânio hiperpuro, cristal semicondutor. |
| NaI(Tl) | **Detector gama com cintilador de iodeto de sódio dopado com tálio** e respectivo tubo multiplicador. |
| REGe | Do inglês, ***Reverse Electrode Coaxial Germanium Detector***: Detector gama de germânio hiperpuro, com eletrodos reversos. |

**D) Sistemas e Técnicas de Medida**

ADC — Do inglês, ***Analog to Digital Converter*** (Conversor Analógico/Digital): circuito eletrônico que converte um nível elétrico (normalmente de tensão) em informação digital (binária ou lógica) com uma dada resolução (número de bits: por exemplo, com oito bits é possível representar 256 níveis distintos – $2^8$).

CAT — Do inglês, ***Coincidence Analyzing Task*** (conjunto de tarefas integradas para análise de coincidências): programa para a análise dos dados obtidos com SCS, desenvolvido com linguagem C++ (OOP), utilizando algoritmos criados com base na metodologia apresentada (v. seção 4.3).

CCA — Do inglês, ***Coincidence Counting Algorithm*** (Algoritmo de Contagem de Coincidências): algoritmo do programa CAT para análise e contagem de pares de eventos coincidentes (normalmente, pares $\beta/\gamma$; v. seção 4.2.4).

DCC — Do inglês, ***Digital Coincidence Counting System*** (Sistema Digital de Contagem de Coincidências): sistema que digitaliza sinais de detecção e análise por *software* (literatura: v. seção 3.2.2.1).

MCA — Do inglês, ***Multichannel Analyzer*** (Analisador Multicanal): instrumento de medidas para espectrometria nuclear, utilizado na obtenção de histogramas de amplitudes (análise PHA), usualmente associadas às energias de eventos de detecção.

NIM — Do inglês, ***Nuclear Instrumentation Module***: conjunto de especificações mecânicas e elétricas como padrão de fabricação de módulos para medidas na área da física nuclear.

PHA — Do inglês, ***Pulse Height Analysis*** (Análise de Altura de Pulso): método de medida que contabiliza os pulsos em faixas estreitas, canais ou classes, de energia (espectrometria), indicadas por suas alturas (v. MCA).

ROI — Do inglês, ***Region Of Interest*** (Região de Interesse): intervalo de canais de um espectro de energias normalmente associado a um pico alvo de análise (transição de interesse).

SAD — Do inglês, ***Software Amplitude Discrimination*** (Discriminação de Amplitude por *Software*): algoritmo do programa CAT para seleção de pulsos de detecção por níveis ou faixas de amplitudes (v. seção 4.2.1).

SCA Do inglês, ***Single Channel Analyzer*** (Analisador Monocanal): instrumento de medida nuclear (módulo), utilizado para a discriminação de amplitudes, por níveis ou janelas (intervalo), usualmente associadas a faixas de energias de eventos de detecção.

SCC Do inglês, ***Software Coincidence Counting*** (Contagem de Coincidências por *Software*): sistema que utiliza módulos convencionais combinando técnicas de análise por *software* (literatura: v. seção 3.2.2.2).

SCS **Sistema de Coincidência por *Software***: sistema baseado em técnicas de análise por software desenvolvido no LMN (v. seção 3.2.2.3).

SDT Do inglês, ***Software Dead Time*** (tempo-morto de medida simulado por *software*): algoritmo do programa CAT para seleção de pulsos de detecção por níveis ou faixas de amplitudes (v. seção 4.2.2).

SMD Sigla adotada neste trabalho para designar **Sistema de Medida Digital**, utilizando a metodologia de coincidências, com análise por *software*.

TAC Do inglês, ***Time to Amplitude Converter*** (Conversor de Tempo em Amplitude): módulo que produz um pulso cuja amplitude é proporcional ao intervalo de tempo entre dois pulsos aplicados às entradas, *Start* e *Stop*.

**E) Computação e Programação**

API Do inglês, ***Application Programming Interface*** (Interface para Programação de Aplicativos): conjunto de funcionalidades e estruturas gerais (padrão), que podem ser utilizadas na produção de programas, de modo a conferir maior grau de abstração à fase de desenvolvimento de *software*.

BIOS Do inglês, ***Basic Input/Output System*** (Sistema Básico de I/O): *software* básico de entrada e saída, necessário à inicialização de uma máquina e carregamento do OS.

GUI Do inglês, ***Graphical User Interface*** (Interface Gráfica de Usuário): composta de janelas e elementos gráficos (*widgets*) para controle e entrada e saída de dados, popularizada pelos sistemas operacionais com ambientes gráficos interativos, como MS-Windows, ou Linux utilizando KDE ou Gnome (entre outros).

IDE — Do inglês, ***Integrated Development Environment*** (Ambiente Integrado de Desenvolvimento): aplicativo que oferece vários recursos para a produção de *software* (programação), como bibliotecas auxiliares, edição de código fonte, compilação e ligação (*linking*) de códigos objeto.

OOP — Do inglês, ***Object Oriented Programming*** (Programação Orientada a Objetos): paradigma de programação que utiliza as **classes** que definem os **objetos**, como entidades que se aproximam do mundo real.

OS — Do inglês, ***Operational System*** (Sistema Operacional): conjunto de código para efetuar o controle e as operações de entrada e saída, em discos (arquivos), teclado, monitor e outros dispositivos, tais como Unix, Linux, Mac OS, MS-Windows, DOS, FreeBSD, e outros.

RAM — Do inglês, ***Random Access Memory*** (Memória de Acesso Aleatório): região de memória volátil de uma máquina, onde são carregados os programas (inclusive OS) e as variáveis em uso pelos programas.

ROM — Do inglês, ***Read Only Memory*** (Memória Apenas para Leitura): região de memória de uma máquina com conteúdo fixo, onde estão os programas e dados essenciais de inicialização (por exemplo: BIOS).

RTC — Do inglês, ***Real-Time Computing*** (Computação em tempo real): sistemas que incluem *hardware* e *software* capazes de garantir o processamento de eventos com uma resolução de tempo da ordem de ms ou μs.

STL — Do inglês, ***Standard Template Library*** (Biblioteca Padrão de Gabaritos): biblioteca C++ que fornece amplo suporte de estruturas e classes padrão de uso genérico; incluem-se vários gabaritos para estruturas de dados que podem conter elementos de qualquer tipo (primitivos ou definidos por usuário), tais como vetores, listas, mapas e pilhas; STL ainda fornece ferramentas de como iteradores para as estruturas (*iterators*) e algoritmos para ordenação, busca, e muitos outros.

UDT — Do inglês, ***User Defined Type*** (Tipo Definido pelo Usuário): tipo ou variável de programa, com estrutura complexa, definida pelo programador, usualmente em linguagens OOP.

UML — Do inglês, ***Unified Modeling Language*** (Linguagem Unificada de Modelagem): conjunto de normas, modelos gráficos e diagramas unificados para a modelagem e documentação OOP.

# 1 INTRODUÇÃO

O método de medida absoluta de atividade de radionuclídeos por coincidências $4\pi\beta$-$\gamma$ é utilizado há décadas, sendo considerado um padrão primário em Metrologia Nuclear. A determinação de atividade de uma fonte radioativa pode ser realizada com grande exatidão, dependendo apenas de grandezas observáveis [1-10]. Usualmente, o sistema é constituído por um contador proporcional a gás fluente ou pressurizado, em geometria $4\pi\beta$, para a detecção de partículas beta ($\beta$), elétrons *Auger*, raios X ou partículas alfa ($\alpha$), associado a um espectrômetro gama ($\gamma$) composto por detectores de cintilação ou semicondutores. Outros sistemas utilizam cintiladores líquidos, onde a geometria $4\pi$ é obtida por meio de uma solução cintiladora contendo o material radioativo. Há também os sistemas que utilizam cintiladores plásticos em geometria $4\pi$ [11-14].

Normalmente estes sistemas utilizam módulos eletrônicos convencionais para efetuar o registro das taxas de contagens dos eventos: $\beta$, $\gamma$, e coincidências. Um módulo de coincidências produz um pulso lógico quando o tempo entre um par de pulsos, $\beta$ e $\gamma$, está dentro de uma faixa pré-ajustada, usualmente entre 1 a 3 $\mu$s. Basicamente, a atividade pode ser obtida a partir das contagens, ou seja, do registro obtido das respectivas taxas de pulsos.

O LMN, situado no Centro do Reator de Pesquisas (CRPq) do IPEN, desde a sua fundação em 1964, tem desenvolvido diversos sistemas de medida de atividade [9, 15-19] e participado de várias Comparações Internacionais patrocinadas pelo *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM – França) [20-26]. Os resultados destas comparações atestam o excelente grau de confiabilidade dos sistemas desenvolvidos no LMN [11-14, 27, 28].

Atualmente, o LMN possui três sistemas primários de medida de coincidências $4\pi\beta$-$\gamma$, dois dos quais são constituídos por detectores proporcionais, um a gás fluente [9] e outro pressurizado [16], e um sistema $4\pi\beta$-$\gamma$ que utiliza cintiladores plásticos em

geometria $4\pi$ [11-14]. Estes sistemas são também utilizados para calibrar os sistemas secundários do LMN, constituídos por câmaras de ionização, detectores de barreira de superfície, de cintilação NaI(Tl) e espectrômetro de cristal de germânio hiperpuro (REGe).

A metodologia de coincidências inclui técnicas e procedimentos cuidadosos, como o método de extrapolação da eficiência $\beta$ (v. seção 3.1.2.1) com inserção de absorvedores de elétrons nas fontes radioativas, que demandam muito tempo quando se utilizam sistemas de medidas convencionais (dias, semanas e até meses, conforme o caso). Ainda, os módulos eletrônicos empregados nesses sistemas apresentam algumas limitações de ajuste que podem inviabilizar a realização de algumas medidas. Estes problemas foram contornados por alguns laboratórios pela implantação de sistemas de coincidência digitais com análise por *software* [29-31], com bons resultados. Utilizando esta técnica, o LMN desenvolveu recentemente o Sistema de Coincidência por *Software* (SCS) [32], incluindo a eletrônica necessária à aquisição de dados e o *software* básico de análise.

## 1.1 Objetivos

Utilizando-se o SCS e o *software* básico de análise é possível padronizar grande número de radionuclídeos com esquemas de decaimento simples, como o $^{60}$Co. Entretanto, as metas estipuladas pelo LMN incluíam a expansão das técnicas de análise, de forma a contemplar casos mais complexos, como o $^{152}$Eu e o $^{67}$Ga. Dentro desse contexto situa-se o projeto de criar uma metodologia abrangente, para ser utilizada junto ao sistema de aquisição SCS, adicionando procedimentos para a padronização de radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos e com transições metaestáveis. Utilizando recursos atuais, esta proposta representa uma alternativa vantajosa para ampliar a capacidade de medida do LMN. A padronização de radionuclídeos com transições metaestáveis e a realização de análises em alta resolução de energia constituem as vantagens e contribuições deste projeto. Os objetivos do presente trabalho incluem as padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga, conferindo caráter prático ao trabalho e possibilitando proceder à avaliação e validação da metodologia desenvolvida. As metas aqui apontadas podem ser sintetizadas da seguinte forma:

a) **Desenvolvimento (contribuição *original*)**

Expansão da metodologia de análise de dados obtidos com o SCS, para a determinação da atividade de radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos ou com transições metaestáveis;

b) **Aplicação para validação do método**

Padronização do $^{152}$Eu, com a obtenção da atividade por ajuste biparamétrico;

c) **Aplicação a radionuclídeo com nível metaestável**

Padronização do $^{67}$Ga, obtendo-se a meia-vida do nível metaestável de 93 keV, a atividade e as probabilidades de emissão gama por decaimento para nove transições.

## 1.2 Estrutura do Trabalho

Após contextualização e enumeração dos objetivos do projeto, os capítulos seguintes apresentam temas necessários à compreensão da metodologia de medida de coincidências (conceitos, teoria e técnicas; resultados), buscando-se um detalhamento apropriado e uma sequência didática. Desta forma, o trabalho é assim estruturado:

- **Capítulo 2 – FUNDAMENTOS TEÓRICOS**: resume os fundamentos gerais relacionados à metodologia, incluindo processos de decaimento radioativo, interações das radiações com a matéria e princípios de detecção.
- **Capítulo 3 – METODOLOGIA DE COINCIDÊNCIA**: reúne teoria e técnicas utilizadas nas medidas de coincidências. Em particular, a seção 3.2 faz uma revisão bibliográfica, descrevendo sucintamente cinco sistemas de medidas, sendo dois equipamentos do tipo convencional [9, 16] e três que utilizam a técnica de aquisição de dados e análise por *software* [29-32], incluindo SCS, utilizado neste trabalho.
- **Capítulo 4 METODOLOGIA DE ANÁLISE POR *SOFTWARE***: apresenta resumidamente a infraestrutura utilizada (LMN) e descreve a metodologia de análise por *software* desenvolvida neste trabalho, incluindo a sua aplicação para as padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga.

• **Capítulo 5 – RESULTADOS**: apresenta as grandezas obtidas e comentários.

• **Capítulo 6 – CONCLUSÕES**: avaliação, comentários finais e perspectivas.

Também são incluídas informações adicionais, tais como:

• Lista de tabelas;

• Lista de figuras;

• Abreviaturas;

• Anexos;

• Glossário de termos e expressões;

• Referências, na ordem em que aparecem ao longo do texto.

# 2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Este capítulo reúne temas e aspectos gerais, importantes para a compreensão das técnicas de medidas nucleares e da metodologia de coincidências [33]. Com uma abordagem resumida, incluem-se os processos nucleares de decaimento, as principais grandezas associadas e os princípios da detecção das radiações.

## 2.1 Decaimento Radioativo

Existem elementos químicos (nuclídeos), naturais ou artificiais, cujos núcleos atômicos são energeticamente instáveis (radionuclídeos), por causa de um desbalanceamento na razão entre o número de nêutrons e prótons. Normalmente, um radionuclídeo cede a energia em excesso, transformando-se e assumindo estados ou níveis energéticos intermediários definidos, até que a estabilidade nuclear seja atingida. Este processo é denominado 'decaimento radioativo' e possui natureza probabilística. Assim, a energia excessiva é dissipada em uma ou mais etapas, desde a máxima excitação, até o estado fundamental (estável). Essencialmente, há dois tipos de fenômenos de mudança de estado, nos quais o núcleo transfere energia ao meio circundante, aqui designados por transmutação (desintegração) e transição.

No fenômeno de decaimento por transmutação nuclear, o radionuclídeo original (pai) dá origem a outro nuclídeo (filho, com número atômico diferente). Há casos, como o do urânio, em que se formam cadeias radioativas, por transmutações sucessivas, produzindo-se filhos e netos, até que resulte um descendente estável. Em uma transição, a dissipação de energia ocorre sem mudança do número atômico, ou seja, pai e filho são constituídos pelo mesmo elemento químico. Como fenômeno de caráter aleatório, o decaimento pode ocorrer por diferentes caminhos com probabilidades próprias, incluindo diferentes modos de transmutação e transições entre níveis de energia. Cada radionuclídeo decai por caminhos próprios, representados graficamente por esquemas de decaimento.

A seguir, abordam-se os processos de decaimento relevantes à metodologia alvo, a saber: transmutações por emissão β, negativa ($\beta^-$) ou positiva ($\beta^+$); captura eletrônica (EC); transições por emissão γ e por conversão interna (IC, um fenômeno que concorre com a emissão γ). As FIG. 2.1 a 2.4 também introduzem as representações gráficas de cada processo (esquemas básicos). As legendas das FIG. 2.1 a 2.3 incluem o termo radionuclídeo truncado por parênteses na referência ao filho do processo, pois este pode ser ainda um radionuclídeo (n > 1) ou um nuclídeo estável, em nível fundamental (índice nulo, n = 1: a indexação de níveis é feita em ordem crescente natural, a partir do zero para o nível fundamental, até o nível de máxima excitação do radionuclídeo pai).

### 2.1.1 Decaimento $\beta^-$

Um radionuclídeo normalmente decai por $\beta^-$ (beta negativo) quando a instabilidade nuclear é causada por excesso de nêutrons. Ocorre, então, a conversão de um nêutron em próton (transmutação), com a emissão de uma partícula $\beta^-$ e de um anti-neutrino ($\overline{\nu}$), como mostra a FIG. 2.1 (a). A partícula $\beta^-$ corresponde a um elétron (mesma massa e carga elétrica), diferindo apenas por sua origem nuclear. Anti-neutrinos são eletricamente neutros, possuem massa desprezível e velocidades relativísticas (próximas à da luz).

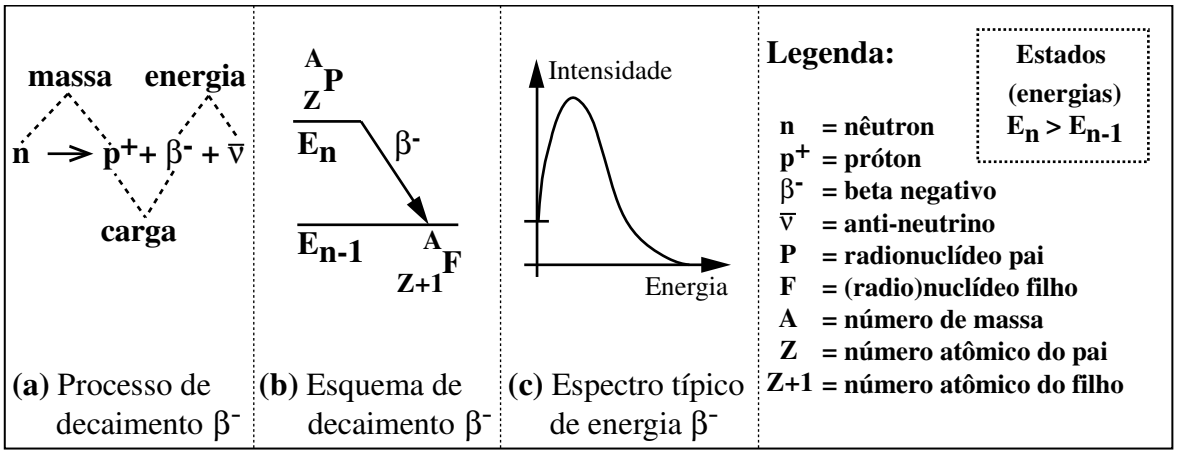



**FIGURA 2.1 – Processo de decaimento $\beta^-$ puro.**

A FIG. 2.1 (b) esquematiza o decaimento por emissão $\beta^-$: o nuclídeo filho ($_{Z+1}F$) possui um próton a mais do que seu pai ($_ZP$); o estado energético muda de $E_n$ a $E_{n-1}$; a seta apontando para baixo e à direita indica, respectivamente, a diminuição da energia do núcleo e o aumento de Z; a massa atômica do filho é a mesma do radionuclídeo pai (A).

A conservação de energia é obtida pela conversão da energia transferida pelo núcleo na cinética total, distribuída entre as partículas emitidas: $\beta^-$ e anti-neutrino. O espectro de energia da emissão $\beta^-$ é contínuo, com uma distribuição similar à da FIG. 2.1 (c).

### 2.1.2 Decaimento $\beta^+$

O decaimento $\beta^+$, também denominado emissão de pósitron, normalmente ocorre quando a instabilidade nuclear é causada por excesso de prótons. Um próton é então convertido em nêutron, com a emissão da partícula $\beta^+$ (pósitron) e de um neutrino ($\nu$), conforme FIG. 2.2 (a). O pósitron tem massa equivalente à de um elétron, mas possui carga elétrica positiva. O neutrino é eletricamente neutro e sua massa é desprezível.

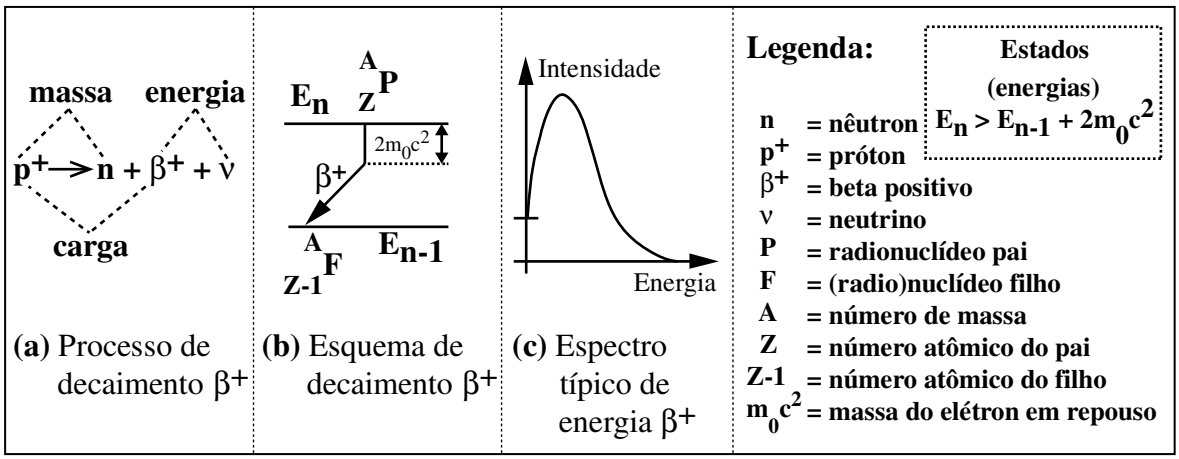



**FIGURA 2.2 – Processo de decaimento $\beta^+$ puro.**

O nuclídeo filho possui um próton a menos e seu número atômico é uma unidade menor ($_{Z-1}F$) que o do pai ($_ZP$). No esquema de decaimento da FIG. 2.2 (b), a seta aponta para baixo (redução da energia do núcleo) e à esquerda (diminuição de Z). O número de massa se mantém. O espectro de energia para a emissão de pósitrons, FIG. 2.2 (c), é similar ao das partículas $\beta^-$.

Existe um limiar energético para a emissão $\beta^+$, de duas vezes a massa de repouso do elétron, para criação de um par elétron/pósitron, necessário ao processo de transmutação. Este fenômeno é indicado na FIG. 2.2 (b), pela linha vertical partindo do estado inicial $E_n$. Abaixo desse limiar este tipo de decaimento torna-se proibido e, portanto, a diferença entre $E_n$ e $E_{n-1}$ deve ser maior do que 1,022 MeV ($2m_0c^2$).

### 2.1.3 Decaimento por Captura Eletrônica

O decaimento por captura eletrônica (EC) concorre com ou substitui a emissão de pósitron. Um elétron orbital é capturado pelo núcleo, convertendo um próton em nêutron, como na emissão de pósitron, conforme indicado na FIG. 2.3 (a). A probabilidade de captura diminui progressivamente para elétrons de camadas mais externas, sendo maior para as camadas K ou L. A conservação de energia é obtida por emissão de um neutrino que carrega a energia entregue pelo núcleo.

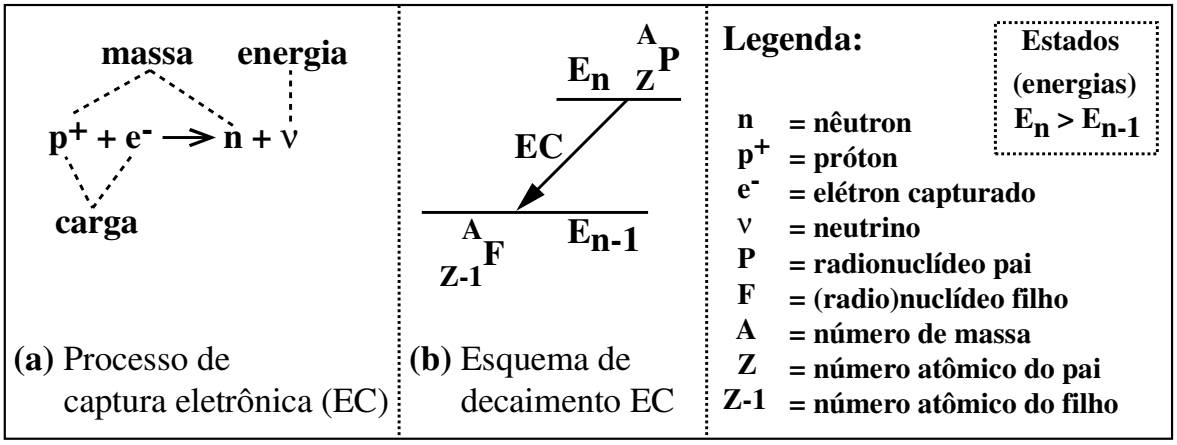



**FIGURA 2.3 – Processo de decaimento por captura eletrônica.**

Embora sejam processos diferentes, o nuclídeo resultante da transmutação nuclear por captura eletrônica é o mesmo de um decaimento $\beta^+$, conforme indicado na FIG. 2.3 (b). Para a ocorrência de captura, entretanto, inexiste limiar energético, pois não ocorre conversão de energia em matéria, como no caso da emissão de pósitron.

### 2.1.4 Transição entre Estados de Energia

No processo de estabilização por transição gama o radionuclídeo cede energia, mudando seu estado energético, sem alteração do número atômico. A quantidade de energia dissipada em uma transição, $E_T$, corresponde à diferença entre as energias dos estados inicial e final, respectivamente, $E_n$ e $E_{n-1}$, ($E_T = E_n - E_{n-1}$). Usualmente, esta transição consiste na emissão de um fóton $\gamma$ monoenergético, de energia $E_\gamma = E_T - E_R$, onde $E_R$ é a energia de recuo do núcleo, durante o processo de emissão do fóton. A conversão interna (IC – *Internal Conversion*) é outro processo de transição em que a energia é transferida diretamente a um elétron orbital (elétron de conversão, mais provavelmente das camadas K ou L). Parte dessa energia é utilizada para arrancar o elétron de sua órbita (energia de ligação, $E_\ell$) e o restante transformado na energia cinética do elétron de conversão: $E_e = E_T - E_\ell$. Os dois processos, $\gamma$ e IC, são normalmente concorrentes, definindo-se o coeficiente de conversão interna ($\alpha$) como a razão entre a probabilidade, ou intensidade de ocorrência do processo de conversão interna ($I_c$) e a intensidade de emissão $\gamma$ ($I_\gamma$): $\alpha = I_c / I_\gamma$. A intensidade total é dada por: $I_T = I_c + I_\gamma$, ou seja, $I_T = (1 + \alpha) I_\gamma$. A FIG. 2.4 (a) esquematiza os processos descritos neste parágrafo e a FIG. 2.4 (b) mostra uma transição que pode ocorrer por dois caminhos: 1 - $\gamma_1$ ou 2 - $\gamma_2$ seguido de $\gamma_3$.

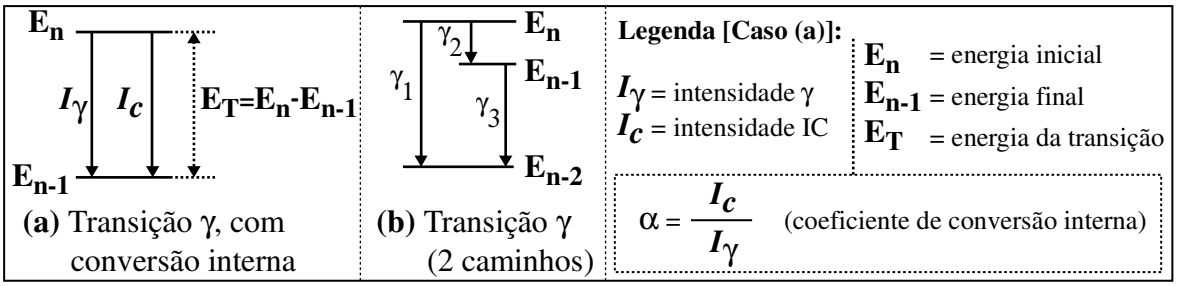



**FIGURA 2.4 – Esquemas das transições por emissão γ e por conversão interna (IC).**

### 2.1.5 Grandezas do Decaimento Radioativo

Qualquer processo de mudança de estado, de um nível de energia inicial, $E_n$, ao nível subsequente, de energia $E_{n-1} < E_n$, ocorre depois de um intervalo de tempo aleatório (***t***). Então, o estado inicial sobrevive por um período de tempo. A observação prática indica que o intervalo mais provável tende a zero. Ou seja, é mais provável que um processo ocorra imediatamente depois daquele que lhe deu origem. Esta probabilidade cai exponencialmente para intervalos maiores, de forma que a taxa de eventos é máxima para intervalos tendendo a zero, conforme a distribuição dada pela expressão:

$$I = I_0 e^{-\lambda t} \tag{2.1}$$

Onde se definem:

| | |
|---|---|
| $I$ | taxa de eventos [$s^{-1}$] ocorrendo depois de um intervalo $t$; |
| $I_0$ | taxa máxima, para $t = 0$ (imediatamente após evento pai); |
| $\lambda$ | constante de decaimento do processo; |
| $t$ | instante do evento filho, medido a partir do instante do evento pai. |

Também se definem grandezas que quantificam os tempos relacionados a um estado. Assim, o tempo médio de vida de um estado (ou vida-média, $T_m$) é dado por:

$$T_m = \int_0^\infty t e^{-\lambda t} dt = 1/\lambda \tag{2.2}$$

A meia-vida do estado, $T_{1/2}$, corresponde ao tempo necessário para que a intensidade dos eventos (atividade do estado) seja reduzida à metade:

$$T_{1/2} = ln2/\lambda \tag{2.3}$$

ou:

$$T_{1/2} = T_m \, ln2 \tag{2.4}$$

Normalmente a vida-média de um estado é muito curta, da ordem de nano a picossegundos. Tempos dessa magnitude são virtualmente nulos para os sistemas de

medidas tratados no presente trabalho. Há casos, porém, em que ocorrem níveis metaestáveis, cujas vidas-médias podem variar de alguns microssegundos até minutos ou horas. Nestes casos, quando possível, a padronização de radionuclídeos deve incluir procedimentos adicionais (seção 3.1.2.3), de forma a corrigir os efeitos da metaestabilidade sobre os resultados da medida, como realizado neste trabalho na padronização do $^{67}$Ga (seções 4.5.2 e 5.2).

A expressão 2.1 também se aplica ao decaimento de um radionuclídeo, sendo a taxa total de eventos (valor médio de eventos por unidade de tempo) correspondente à atividade do radionuclídeo, ou da amostra radioativa. A atividade é, então, função exponencial do tempo de decaimento, $t$: $A = A_0 e^{-\lambda t}$, que é a própria expressão 2.1, onde se substitui a intensidade do processo, $I$, pela atividade do radionuclídeo, $A$. $\lambda$ é então chamada de constante de decaimento do radionuclídeo. A unidade de atividade no Sistema Internacional de Medidas (SI) é o Becquerel (desintegrações por segundo: unidade $s^{-1}$; símbolo Bq).

## 2.2 Interação da Radiação com a Matéria

Conceitos relacionados à interação da radiação com a estrutura de um meio absorvedor são importantes à compreensão dos princípios de operação dos detectores, elementos indispensáveis às técnicas de medidas nucleares, área em que se inclui a metodologia em questão. Considera-se suficiente abordar este tema de forma expositiva e sucinta.

Tanto fótons quanto partículas podem dar origem à ionização ou excitação do meio absorvedor, mesmo que estas resultem de interações indiretas, como no caso dos nêutrons. A ionização ocorre quando a energia transferida a um elétron orbital é maior do que a sua energia de ligação ao átomo, de maneira que o mesmo é arrancado de sua órbita. Forma-se então um par de íons constituído pelo elétron livre e pelo átomo interagente, em forma de cátion. Em estruturas cristalinas semicondutoras, o átomo ionizado é denominado lacuna, um portador de corrente com carga positiva, equivalente ao elétron.

A excitação atômica, fenômeno similar à ionização, ocorre quando a energia transferida é insuficiente para arrancar o elétron do átomo, mas suficiente para levá-lo a um estado vibratório de maior energia, ou seja, a uma camada mais externa na eletrosfera. Nos semicondutores, elétrons da banda de valência excitados são promovidos à banda de condução, formando-se pares elétron/lacuna (vacância na banda de valência).

Nos dois casos, ionização e excitação, o desligamento do elétron ou sua promoção a camadas superiores dá origem a uma lacuna orbital. O átomo assim instabilizado, em razão da energia absorvida, passa por um rearranjo da eletrosfera. Trata-se de um processo em cascata em que uma lacuna é preenchida por um elétron de camada superior, dando origem a outra lacuna. Em sucessão, as lacunas são todas reocupadas, e o átomo retorna a seu estado fundamental. Ao saltar para uma camada inferior vazia, um elétron cede uma quantidade de energia definida pela diferença entre os níveis energéticos dos orbitais, inicial e final (reocupado). Essa energia pode ser diretamente convertida em raios X característicos (ou fótons no espectro luminoso) ou transferida a outro elétron mais fracamente ligado ao átomo, dando origem ao elétron *Auger*, com ocorrência de nova ionização. Ressalta-se que os processos originais têm lugar mais provável em camadas internas (K ou L), e que os processos subsequentes envolvem, progressivamente, as camadas superiores. A radiação de *Bremsstrahlung* (v. seção 2.2.1) é constituída de fótons com origem nas interações de partículas carregadas, sendo mais significativas para as partículas leves, como os elétrons.

Meios materiais, gasosos, líquidos ou sólidos, podem absorver energia das radiações incidentes (cinética ou eletromagnética). Em qualquer processo de interação, a deposição de energia pode ser total, parcial ou mesmo nula. A deposição total da energia pode ocorrer em uma única interação, ou em interações sucessivas, com deposição de frações da energia incidente, até que a mesma seja completamente absorvida. A deposição parcial ocorre quando a radiação incidente abandona o meio antes de sua completa absorção, podendo a energia remanescente ser transferida a outros materiais circundantes. A radiação também pode atravessar o meio sem interagir, com deposição nula de energia. O poder de penetração, ou alcance em um meio material, depende do tipo de radiação, de sua energia e do próprio material absorvedor. Partículas pesadas, como alfa, têm alcance

muito curto, podendo ser barradas por uma folha de papel. Elétrons penetram mais, dependendo de sua energia, podendo percorrer milímetros ou centímetros, conforme a densidade do meio absorvedor. Gamas de altas energias têm baixa probabilidade de interação, sendo capazes de atravessar espessas camadas de metal, incluindo o chumbo, muito utilizado na construção de blindagens (estruturas para atenuação das radiações). Existem vários e diferentes mecanismos de interação específicos a cada classe de radiação. Partículas carregadas leves e fótons têm grande relevância, pois a metodologia de medida apresentada se baseia na detecção de partículas $\beta$, elétrons *Auger* e de conversão interna, fótons $\gamma$ e, eventualmente, X.

### 2.2.1 Interação de Partículas Eletricamente Carregadas

Partículas carregadas basicamente colidem na eletrosfera, cedendo total ou parcialmente a sua energia cinética, podendo, nesse processo, excitar ou ionizar átomos do meio. Há outro processo em que partículas eletricamente carregadas interagem nas cercanias nucleares, sendo desaceleradas ou desviadas de suas trajetórias (espalhamento), com a emissão de fótons de frenamento (radiação de *Bremsstrahlung*). Este fenômeno é mais significativo para partículas leves, e é utilizado como princípio de produção de raios X, em válvulas onde um feixe de elétrons é colimado para um alvo de tungstênio.

### 2.2.2 Interação de Fótons

Os fótons podem ser totalmente absorvidos (efeito fotoelétrico ou produção de pares, por exemplo) ou sofrer espalhamento (como no efeito *Compton*). Os efeitos mais importantes para este trabalho são o fotoelétrico e o *Compton*. Há ainda outras formas de interação dos fótons, desconsideradas por sua menor importância, podendo-se citar como exemplo o espalhamento *Rayleigh*.

No efeito fotoelétrico, um elétron orbital do meio absorvedor é arrancado do átomo, pela absorção total da energia do fóton incidente. Então, nesse processo de ionização, o

fóton incidente deixa de existir, dando lugar ao elétron livre, cuja energia cinética inicial é igual à diferença entre a energia do fóton e a energia de ligação do elétron ao átomo.

No efeito *Compton*, a ionização se dá por absorção parcial da energia do fóton. Desta forma, além do elétron livre que carrega a parcela da energia incidente transferida menos sua energia de ligação, tem-se como resultado um fóton espalhado que transporta a energia restante, em uma direção que pode ser diferente da do fóton incidente.

A produção de pares ocorre para energias acima de 1,022 MeV, necessária à criação do par elétron/pósitron (conversão de energia em matéria). O restante da energia é convertido na energia cinética total, distribuída entre as partículas criadas.

### 2.2.3 Interação de Partículas Eletricamente Neutras

Partículas neutras constituem um caso particular, pois promovem uma ionização indireta. Nêutrons interagem nuclearmente com certos materiais, muitas vezes dando origem a partículas carregadas ou fótons $\gamma$, que podem interagir nas formas mencionadas nos dois parágrafos anteriores. Os neutrinos possuem massa desprezível e energias relativísticas, de forma que a probabilidade de interagir com a matéria é muito baixa, podendo atravessar milhares de quilômetros de meio sólido.

## 2.3 Detecção das Radiações

Há vários dispositivos detectores de radiações, idealizados para converter as formas de deposição de energia em sinais elétricos, na forma de impulsos ou níveis de tensão, corrente ou carga. Esses sinais podem ser processados eletronicamente, com diferentes circuitos que compõem os equipamentos e sistemas de medidas, utilizados em dosimetria, espectrometria e padronização de radionuclídeos, entre outras aplicações.

### 2.3.1 Princípios da Detecção

O meio absorvedor mencionado na seção 2.2 pode ser definido como o volume sensível de um detector, ou a região delimitada do material com o qual, efetivamente, as radiações interagem, para a produção dos impulsos de detecção. Os detectores possuem volumes sensíveis limitados, na maioria dos casos, de algumas dezenas de centímetros cúbicos, podendo ocorrer absorção total ou parcial da energia incidente. Em muitos detectores, a amplitude ou altura do pulso é diretamente proporcional à energia depositada pela radiação, no volume de detecção. Se a deposição é total, a altura do pulso guarda proporcionalidade com a energia da partícula ou fóton que interagiu, uma informação importante para medidas espectrométricas. A altura de um pulso produzido por deposição parcial representa apenas uma fração da energia de emissão, ou a energia depositada no volume sensível, sendo, então, imprópria para a determinação da energia da radiação incidente. Há detectores, como os contadores *Geiger*, que produzem pulsos saturados, utilizados apenas para contagem de pulsos, na monitoração de radiação ou contaminação.

O fenômeno de ionização é utilizado como princípio de detecção e, basicamente, os íons produzidos no volume sensível são acelerados por um campo elétrico produzido por eletrodos estrategicamente posicionados e polarizados, e coletados, de forma a produzir impulsos que podem ser amplificados e processados por circuitos especiais. Nesta categoria inserem-se muitos tipos de detectores, gasosos (câmaras de ionização, contadores proporcionais e contadores *Geiger*) e sólidos (semicondutores em geral).

Os processos de interação com excitação do meio sensível, seguidos de fótons secundários na faixa da luz, constituem o princípio para os detectores de cintilação. Existem materiais, cintiladores líquidos ou sólidos, que produzem fótons de luz quando absorvem energia radiante. Essa cintilação, por sua vez, excita o foto-catodo de uma válvula denominada fotomultiplicadora, de forma a produzir uma avalanche eletrônica que, coletada no anodo, produz o impulso de detecção. Há outros materiais em que elétrons excitados ficam presos em armadilhas de sua estrutura cristalina. Posteriormente, esses elétrons podem ser libertados, por exemplo, por aquecimento, de forma a devolver energia absorvida em forma de luz, que pode ser quantificada e associada ao total da energia

armazenada em um dado período de tempo. Este é um dos princípios empregados na dosimetria das radiações.

Os detectores de partículas neutras utilizam outros princípios além dos mencionados. Para a detecção de nêutrons utilizam-se materiais com alta secção de choque, os conversores, que absorvem nêutrons por interações nucleares que podem dar origem a outras formas de radiação ionizante, cuja detecção indica a absorção neutrônica. Dessa forma, sua detecção é indireta. A detecção de neutrinos é extremamente difícil, em razão da sua baixa probabilidade de interação. Poucos laboratórios equipados com detectores gigantescos, instalados em condições muito especiais, realizam experimentos que envolvem a detecção de neutrinos.

Os detectores são empregados de várias maneiras e em diversas finalidades. É possível efetuar desde a simples contagem dos pulsos de detecção, para a determinação de taxas e atividades, até um processamento dos pulsos por sistemas especializados. Nesta última categoria, pode-se incluir a análise da forma dos pulsos (altura, largura, tempos de subida ou descida), para a contabilização por diferentes critérios, tais como a seleção de acordo com a energia (altura) ou com a origem ou tipo de radiação, identificada pela forma. A análise de altura de pulso (*Pulse Height Analysis* – PHA) para espectrometria de energia, por exemplo, é muito utilizada em medidas nucleares. A análise de forma é importante quando se utilizam detectores sensíveis a diferentes tipos de radiação ($\alpha$ e $\beta$, por exemplo), com tempos de formação de pulsos diferentes para cada tipo. Neste exemplo, é possível, determinar as respectivas taxas ($\alpha$ e $\beta$), independentemente, computando-as de acordo com a forma dos pulsos detectados.

# 3 METODOLOGIA DE COINCIDÊNCIA

Este capítulo reúne aspectos teóricos e práticos relacionados à metodologia de medida de coincidências, desde a sua concepção, estabelecendo as bases para o desenvolvimento realizado neste trabalho, apresentado no capítulo 4. Deste modo, abordam-se:

- Seção 3.1 – Princípios, formulação básica e suas generalizações; técnicas usualmente empregadas nas medidas;
- Seção 3.2 – Revisão da bibliografia (mencionada na seção 1.2), apresentando sistemas de medidas disponíveis (convencionais e digitais), que constituem um elo importante na evolução da experimentação prática. Destacam-se as vantagens das técnicas de análise dos sistemas digitais.

## 3.1 Teoria e Técnicas da Metodologia de Coincidência

A padronização de radionuclídeos pelo método de coincidência consiste, basicamente, em registrar as taxas de pulsos de eventos correlacionados (responsáveis por coincidências), emissões β ($N_\beta$), transições γ ($N_\gamma$) e coincidências entre as anteriores (eventos detectados simultaneamente: $N_C$). Essas contagens provêm de um arranjo de detecção apropriado. Normalmente efetua-se a discriminação das amplitudes (alturas) dos pulsos, de modo a rejeitar ruído e selecionar faixas de energia de interesse. Para a contagem de coincidências utiliza-se um circuito que pode ser comparado a uma porta lógica E (**AND**) que admite pequena defasagem de tempo entre os pulsos, da ordem de microssegundos. Essa tolerância corresponde ao tempo de resolução de coincidências. Como os detectores apresentam diferentes tempos para a formação dos pulsos e os circuitos utilizados possuem tempos de atraso intrínsecos ao processamento de sinais que redundam em flutuações no intervalo de tempo das coincidências, os sistemas devem disponibilizar dispositivos ou métodos que possibilitem ajustar os níveis de discriminação e o tempo de resolução de coincidências, conforme necessário.

### 3.1.1 Metodologia Base

Para um esquema de desintegração simples, com a emissão de uma partícula β seguida de uma transição γ, por exemplo, as taxas de contagens nas três vias são dadas por:

$$N_\beta = \varepsilon_\beta N_0 \tag{3.1}$$

$$N_\gamma = \varepsilon_\gamma N_0 \tag{3.2}$$

$$N_C = \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma N_0 \tag{3.3}$$

Onde:

$N_0$ taxa de desintegração (atividade) da amostra;

$\varepsilon_\beta$ e $\varepsilon_\gamma$ eficiências de contagem, β e γ, respectivamente.

Das expressões 3.1 a 3.3 pode-se deduzir que:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_0 \tag{3.4}$$

Em princípio, é possível obter a atividade da amostra, $N_0$, independentemente das eficiências de detecção. Se realizado de forma cuidadosa, este procedimento simples resulta em excelente exatidão e precisão. Ressalta-se que a expressão 3.4 é válida quando $N_\beta$ e $N_\gamma$ representam as contagens de eventos de transmutação, relacionados à contagem $N_C$ (pares de eventos de uma mesma transmutação detectados simultaneamente). As eficiências de contagem englobam as eficiências de detecção e as eficiências determinadas pela discriminação dos pulsos (entre os pulsos detectados, apenas aqueles que obedecem aos critérios de discriminação são efetivamente computados).

### 3.1.2 Metodologia Generalizada

A metodologia base considera o caso ideal, em que a contagem $N_\beta$ é associada apenas a eventos que podem dar origem às coincidências, como as partículas β e os

elétrons *Auger*. Em muitos casos, porém, o detector 4πβ também registra eventos de decaimento não correlacionados, como elétrons de conversão interna ou mesmo fótons γ (detecção cruzada). Assim, as expressões 3.1 a 3.4 devem ser revistas, de modo a incluir outros fenômenos de decaimento e de detecção. Esta generalização permite que se obtenham expressões derivadas, apropriadas a esquemas de decaimento específicos, mais complexos, incluindo a presença de transições metaestáveis ou de diferentes ramos de decaimento ($\beta^-$, $\beta^+$, EC).

Considerando-se mais de um ramo de decaimento β (índices *r*), a detecção de radiação γ e de elétrons de conversão interna na via 4πβ, obtém-se a expressão geral do método de coincidência [9]:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_0 \frac{\sum \mathbf{a}_r[\varepsilon_{\beta_r} + (1-\varepsilon_{\beta_r})\left(\frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1+\alpha}\right)_r] \sum \mathbf{a}_r \frac{\varepsilon_{\gamma_r}}{(1+\alpha_r)}}{\sum \mathbf{a}_r[\varepsilon_{\beta_r}\frac{\varepsilon_{\gamma_r}}{(1+\alpha_r)} + (1-\varepsilon_{\beta_r})\varepsilon_{ce_r}]} \tag{3.5}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $N_\beta$ | taxa de contagem observada na via β (β, γ, elétrons *Auger* e elétrons de conversão); |
| $N_\gamma$ | idem, para a via γ; |
| $N_C$ | idem, para a via de coincidências; |
| $\varepsilon_{\beta_r}$ | eficiência de detecção β para o ramo *r*; |
| $\varepsilon_{\gamma_r}$ | eficiência de detecção γ para o ramo *r*; |
| $\varepsilon_{ce}$ e $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ | correspondem respectivamente às eficiências do detector β para elétrons de conversão (***ce*** = *conversion electrons*) e fótons γ; |
| $\alpha_r$ | coeficiente de conversão interna da transição do ramo *r*; |
| $\mathbf{a}_r$ | abundância relativa do ramo *r*. |

### 3.1.2.1 Método da Extrapolação Linear da Eficiência

De acordo com a expressão 3.5, quando a intensidade de elétrons de conversão interna é significativa, as taxas de contagem observadas ficam afetadas, sendo que $\boldsymbol{N_\beta}$ aumenta, com uma redução correspondente em $\boldsymbol{N_\gamma}$ e em $\boldsymbol{N_C}$. Assim, a atividade calculada pela expressão base, 3.4, resulta maior do que a atividade real. Por outro lado, observa-se que a expressão generalizada 3.5 introduz uma dependência das eficiências de contagem, que é mais significativa para a via de contagem β, tornando-a inviável. Esta dependência fica mais evidente na versão simplificada da expressão 3.5 [3, 4], que é obtida quando apenas uma transição gama é selecionada:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_0 \left[ \mathbf{1} + \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{\mathbf{1} + \alpha} \right) \left( \frac{\mathbf{1} - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \right) \right] \tag{3.6}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $\boldsymbol{N_\beta}$, $\boldsymbol{N_\gamma}$ e $\boldsymbol{N_C}$ | taxas de contagens, como em 3.5; |
| $\boldsymbol{\varepsilon_\beta}$ | eficiência de contagem de partículas β na via 4πβ; |
| $\boldsymbol{\varepsilon_{ce}}$ | eficiência de contagem de elétrons de conversão na via 4πβ; |
| $\boldsymbol{\varepsilon_{\beta_\gamma}}$ | probabilidade do detector β detectar γ; |
| $\frac{\mathbf{1}-\varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}$ | fator de ineficiência β, ou probabilidade complementar normalizada (de não contar β); corresponde à abscissa $\boldsymbol{x}$; |
| $\boldsymbol{\alpha}$ | coeficiente de conversão interna da transição; |
| $\left(\frac{\alpha\varepsilon_{ce}+\varepsilon_{\beta_\gamma}}{\mathbf{1}+\alpha}\right)$ | constante $\boldsymbol{k}$: contribuição dos elétrons de conversão e γ para $\boldsymbol{N_\beta}$. |

A expressão 3.6 pode ainda ser reduzida, transformando-se o fator de ineficiência na variável independente $\boldsymbol{x}$, o primeiro membro, atividade observada ou aparente, na variável dependente $\boldsymbol{y}$; e a parcela de elétrons de conversão e γ na constante $\boldsymbol{k}$ ($\boldsymbol{\alpha}$ é constante; $\boldsymbol{\varepsilon_{ce}} \approx 1$; e $\boldsymbol{\varepsilon_{\beta_\gamma}} \approx 0$). A segunda parcela entre colchetes resulta no produto $\boldsymbol{kx}$, que corresponde, principalmente, à contribuição dos elétrons de conversão na contagem da

via β, quando a respectiva partícula β não é detectada. Feitas estas considerações, a expressão 3.6 pode ser escrita como:

$$y = N_0 (1 + kx) \tag{3.7}$$

Frequentemente, a expressão 3.7 é normalizada pelo valor da atividade $N_0$, resultando: $y' = 1 + kx$, onde $y' = y / N_0$. Estas expressões representam a equação de uma reta, cuja inclinação está diretamente associada à contagem dos eventos não correlacionados (elétrons de conversão interna), em detrimento das contagens β. O intercepto dessa reta corresponde à atividade almejada, $N_0$.

A variável independente $x$ reflete diretamente a ineficiência de contagem β. Portanto, o método da extrapolação linear consiste em efetuar várias medidas, variando-se, gradativamente, algum parâmetro relacionado à eficiência de contagem de partículas β responsáveis pelas coincidências. Dentro do possível, deve-se manter constante a eficiência de contagem de elétrons de conversão, cuja detecção também é realizada no detector 4πβ. Para cada medida obtém-se a atividade aparente, $y$, dada pela expressão base 3.4 e o respectivo fator de ineficiência, $x$. Obtém-se, então, uma curva ajustada aos pontos experimentais ($x$, $y$) e a atividade, $N_0$, como o valor do intercepto (expressão 3.7): atividade extrapolada para ineficiência zero (eficiência 100%: $\varepsilon_\beta = 1$). Este método é utilizado por muitos laboratórios, entre os quais o LMN, com excelentes resultados.

Na prática, a eficiência de contagem β pode ser reduzida utilizando-se absorvedores de elétrons com diferentes espessuras (polímeros, alumínio e outros materiais), ou rejeitando-se pulsos por amplitude, elevando-se o limiar de tensão da discriminação β. Os dois métodos devem ser realizados de forma gradativa, para obter uma quantidade de pontos suficiente à precisão desejada. Quando aplicado aos sistemas convencionais, este processo exige planejamento e execução cuidadosos, com a intervenção constante do operador, para efetuar todos os ajustes necessários a cada medida. Há padronizações que demandam vários dias, e qualquer falha pode redundar em prejuízo à precisão ou exatidão, ou na perda completa do trabalho realizado. Com a metodologia de análise por *software*, o processo é realizado com apenas um conjunto de aquisição de dados (v. seção 3.2.2.3).

A FIG. 3.1 mostra uma curva de extrapolação obtida para o $^{133}$Ba, em um trabalho do LMN que apresenta o método de padronização com normalização por Monte Carlo [34] (v. seção 4.4.1). Podem-se observar mais de vinte medidas experimentais (pontos cheios) e os resultados de simulação (pontos vazios). Da expressão 3.4 (ou 3.6) deduz-se que a eficiência de contagem β é dada por: $\varepsilon_\beta = N_C/N_\gamma$. Portanto, o fator de ineficiência (abscissa) é expresso por: $x = (1 - N_C/N_\gamma)/(N_C/N_\gamma)$. Os valores de atividade estão representados em razão à massa da amostra radioativa (atividade específica, em kBq g$^{-1}$).

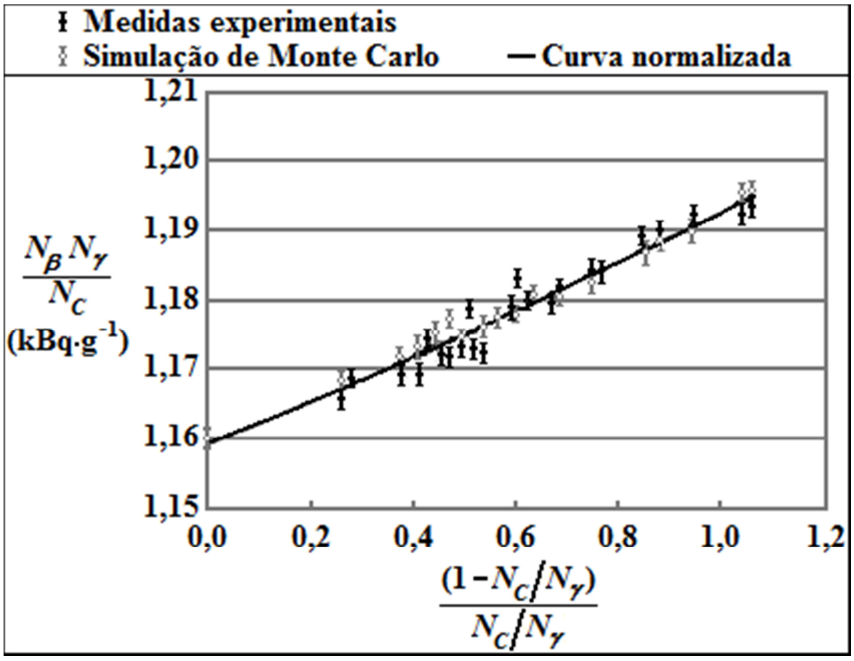



**FIGURA 3.1 – Curva de extrapolação da padronização de uma amostra de $^{133}$Ba com normalização por Monte Carlo.**

Na maior parte dos casos as expressões 3.6 ou 3.7 são satisfatórias, sendo suficiente efetuar a regressão linear dos pontos experimentais. Entretanto, há casos em que os elétrons de conversão interna (responsáveis diretos pela inclinação da curva de extrapolação) são rejeitados, junto com as partículas β (ou elétrons *Auger*), no processo de discriminação eletrônica. Então, essas expressões tornam-se inválidas, pois o parâmetro ***k***, considerado constante, torna-se função da eficiência de contagem β. Embora a inclinação permaneça positiva (conforme análise apresentada no primeiro parágrafo desta seção), a curva de extrapolação deixa de ser representada por uma reta.

### 3.1.2.2 Metodologia para dois Ramos de Decaimento

A expressão geral 3.5 considera mais de um ramo de decaimento por emissão β, para um único modo de desintegração ($\beta^-$, $\beta^+$ ou captura eletrônica). Entretanto, muitos radionuclídeos decaem por mais de um modo de desintegração, cada um deles possuindo vários ramos de decaimento, exigindo equacionamento apropriado. Nesta categoria, é relevante o caso do $^{152}$Eu, em razão da padronização realizada neste trabalho, utilizando uma mesma amostra de trabalho anterior [35] (v. seções 4.5.1 e 5.1). O $^{152}$Eu decai com meia-vida de 4939 dias, por captura eletrônica (~72%) e por $\beta^+$ (~0,03%) aos níveis excitados do $^{152}$Sm, e por $\beta^-$ (~28%) aos níveis excitados do $^{152}$Gd (v. seção 4.5.1, FIG. 4.20). A contagem no detector 4πβ, $N_\beta$, compreende eventos de captura (elétrons *Auger* ou X, com probabilidade $\boldsymbol{a}$ e eficiência $\varepsilon_A$) e partículas $\beta^-$ (com probabilidade $\boldsymbol{b}$ e eficiência $\varepsilon_\beta$). Ressalta-se que o ramo $\beta^+$ possui probabilidade desprezível (~0,027%), tendo sido desconsiderado ($\therefore \boldsymbol{a}+\boldsymbol{b}=1$). Dessa forma, a contagem na via β pode ser expressa por:

$$N_\beta = N_0(a\,\varepsilon_A + b\,\varepsilon_\beta) \tag{3.8}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $\boldsymbol{a}$ e $\boldsymbol{b}$ | respectivamente, abundâncias dos ramos de captura e $\beta^-$; |
| $\varepsilon_A$ e $\varepsilon_\beta$ | respectivamente, eficiências de contagem de captura e $\beta^-$. |

Dividindo-se cada membro da expressão 3.8 pelo produto das eficiências, $\varepsilon_A\,\varepsilon_\beta$, e manipulando-se algebricamente, chega-se a:

$$\frac{N_\beta}{\varepsilon_\beta \varepsilon_A} = N_0\left[1 + a\left(\frac{1-\varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}\right) + b\left(\frac{1-\varepsilon_A}{\varepsilon_A}\right)\right] \tag{3.9}$$

A expressão 3.6 mostra uma dependência com o fator de ineficiência β, sendo que na expressão acima se observa a dependência de dois fatores de ineficiência, cada um relacionados a um ramo de decaimento diferente. Neste caso, deve-se efetuar o método de extrapolação dupla, considerando-se os dois fatores, de modo que ambos tendam a zero ($\varepsilon_\beta \approx 1$ e $\varepsilon_A \approx 1$), fazendo com que a contagem $N_\beta$ tenda à atividade procurada, $N_0$. A

expressão 3.9 pode ainda ser manipulada algebricamente de forma a obter uma versão mais conveniente, tanto à compreensão quanto à aplicação prática, resultando:

$$\boldsymbol{y = p_1 x_1 + p_2 x_2} \tag{3.10}$$

Onde:

| | | |
|---|---|---|
| $\boldsymbol{y}$ | igual a: | $\frac{N_\beta}{\varepsilon_\beta \varepsilon_A}$; |
| $\boldsymbol{p_1}$ | igual a: | $N_0$ (atividade da fonte radioativa); |
| $\boldsymbol{p_2}$ | igual a: | $aN_0 = ap_1$; |
| $\boldsymbol{a}$ | intensidade (abundância) do ramo de captura eletrônica; | |
| $\boldsymbol{x_1}$ | igual a: | $1 + \left(\frac{1-\varepsilon_A}{\varepsilon_A}\right)$ |
| $\boldsymbol{x_2}$ | igual a: | $\left(\frac{1-\varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}\right) - \left(\frac{1-\varepsilon_A}{\varepsilon_A}\right)$. |

As variáveis independentes da expressão 3.10, $x_1$ e $x_2$, refletem as eficiências de contagem para os dois ramos de decaimento do $^{152}$Eu. A variável $y$ depende diretamente dessas eficiências e da contagem observada na via 4πβ. O parâmetro $p_1$ é a própria atividade da fonte e $p_2$ é o produto dessa atividade pela abundância de captura, $a$. Quando os dois fatores de ineficiência tendem a zero resulta: $x_1 \approx 1$; $x_2 \approx 0$; e $y \approx N_\beta \approx N_0$.

A utilização prática da expressão 3.10 depende da obtenção dos dois fatores de ineficiência para uma mesma contagem β, $N_\beta$, obtida para diferentes níveis de discriminação eletrônica. Realizam-se pares de medidas para um mesmo nível de discriminação. Uma das medidas é centrada em uma transição $\gamma_A$ correlacionada ao ramo de decaimento por captura, de forma a obter as contagens γ e de coincidências, $N_{\gamma A}$ e $N_{CA}$. Desta forma, o fator de ineficiência de contagem da via 4πβ para o ramo de captura é dado por: $(1-N_{CA}/N_{\gamma A})/(N_{CA}/N_{\gamma A})$. A outra medida do mesmo par focaliza uma transição $\gamma_B$, decorrente de ramo $\beta^-$, de modo a obter as contagens γ e de coincidências, $N_{\gamma B}$ e $N_{CB}$, e o fator de ineficiência de contagem da via 4πβ para o ramo $\beta^-$: $(1-N_{CB}/N_{\gamma B})/(N_{CB}/N_{\gamma B})$. O processo deve ser repetido alterando-se gradativamente a eficiência de contagem, $\varepsilon_\beta$, de

forma a obter vários pares de medidas e os respectivos trios de valores ($\varepsilon_A$, $\varepsilon_\beta$, $N_\beta$), e, destes, o conjunto de trios ($x_1$, $x_2$, $y$), utilizados para o ajuste biparamétrico, expressão 3.10, determinando-se os parâmetros $p_1$ e $p_2$. Com este método também se efetua a compensação de efeitos de conversão interna, desconsiderados nesta seção, que focaliza o equacionamento para dois parâmetros. O método permite obter a atividade da fonte e as probabilidades de cada ramo (captura eletrônica e $\beta^-$): $N_0 = p_1$; $a = p_2/p_1$; $b = 1 - a$.

### 3.1.2.3 Metodologia para Transições Metaestáveis

Para radionuclídeos com transições metaestáveis, a contagem na via 4πβ sofre influência de eventos atrasados, que deve ser incluída na expressão 3.5 (ou 3.6). A metodologia apresentada baseia-se em uma padronização anterior do $^{67}$Ga, realizada no LMN [28], introduzindo, porém, recursos de análise por *software*, de modo a dispensar grande parte dos módulos eletrônicos necessários aos sistemas convencionais. A expressão obtida no referido trabalho, incluindo efeitos de metaestabilidade, é dada por:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_0 \left[ 1 + \left( \frac{\alpha_r \varepsilon_{ce}}{1+\alpha_r} \right)_{atrasado} e^{-\lambda\tau} + k_\varepsilon \right] \tag{3.11}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $N_\beta$ | taxa de eventos da via 4πβ, incluindo partículas β, elétrons *Auger* e elétrons de conversão interna (prontos e atrasados); |
| $N_\gamma$ e $N_C$ | respectivamente, taxas γ e de coincidências; |
| $N_0$ | atividade da fonte; |
| $\alpha_r$ | coeficiente de conversão interna total para o ramo *r*; |
| $\varepsilon_{ce}$ | eficiência de contagem para elétrons de conversão; |
| $\tau$ | tempo-morto da medida; |
| $\lambda$ | constante de decaimento da transição metaestável; |
| $k_\varepsilon$ | igual a: $[(1-N_C/N_\gamma)/(N_C/N_\gamma)]C$, sendo: |
| $C$ | igual a: $[(\alpha_r\varepsilon_{ce}+\varepsilon_{\beta\gamma})/(1+\alpha_r)]_{pronto} + [(\alpha_r\varepsilon_{ce}+\varepsilon_{\beta\gamma})/(1+\alpha_r)]_{atrasado}$. |

A expressão 3.11 mostra que a contagem $N_\beta$ é afetada por eventos de conversão atrasados, e observa-se que essa influência está diretamente relacionada ao tempo-morto da medida, $\tau$, no termo exponencial. Dessa forma, quando $\tau$ tende a infinito, essa parcela de elétrons de conversão interna atrasados tende a zero, e a expressão 3.11 resulta equivalente a 3.5 ou 3.6. Conclui-se que, se o tempo-morto da medida tender a infinito, a padronização de radionuclídeos com níveis metaestáveis pode ser realizada pelo método de extrapolação da eficiência, dado na seção 3.1.2.1. Na prática, deve-se utilizar algum artifício para aumentar o tempo-morto a cerca de dez vezes o valor da meia-vida da transição metaestável. Para o $^{67}$Ga, a meia-vida para a transição de 93 keV é cerca de 9 μs, sendo satisfatório estender o tempo-morto a aproximadamente 90 μs. Podem-se realizar várias medidas, com alteração gradativa de $\tau$, e efetuar a extrapolação para $\tau$ tendendo a infinito. Esta técnica foi utilizada para a padronização do $^{67}$Ga [28], utilizando-se um sistema convencional com contadores. Com a metodologia desenvolvida, o tempo-morto é alterado por *software* e, como na obtenção da curva de extrapolação, uma única aquisição de dados é necessária, reduzindo-se significativamente o tempo do processo de padronização.

## 3.2 Sistemas de Medida de Coincidências Encontrados na Literatura

Esta seção apresenta cinco sistemas de medida. Dois destes, instalados no LMN, utilizam módulos eletrônicos convencionais. Incluem-se dois sistemas digitais descritos em literatura, que utilizam técnicas de análise por *software*, adotados como referências para o desenvolvimento de SCS, também descrito. As características de cada sistema são apresentadas, analisando-se diferenças, vantagens e deficiências, bem como a relevância para o estabelecimento das especificações de SCS.

Convém ressaltar que, independentemente do sistema utilizado, convencional ou digital, deve-se dispor de um arranjo de detecção apropriado ao registro das taxas de eventos de detecção ($N_\beta$, $N_\gamma$ e $N_C$), conforme seção 3.1. Diversos tipos de detectores, com diferentes características, podem ser empregados (gasosos; cintiladores, líquidos ou sólidos; semicondutores). Normalmente utilizam-se detectores β e γ e os respectivos módulos para amplificação e formatação (*pulse shaping*) dos sinais.

As contagens de uma medida estão relacionadas a vários fatores, como atividade da fonte, tempo da medida, tempo-morto do sistema e eficiências de detecção. Os níveis de discriminação e o tempo de resolução de coincidências também exercem influência sobre as contagens. A discriminação $\beta$ normalmente deve rejeitar apenas os pulsos com baixas amplitudes da região de ruído, ou acima desta, para reduzir a eficiência de contagem. A discriminação $\gamma$ usualmente seleciona os pulsos cujas amplitudes estão em um pico de absorção total, para a transição de interesse (a mais intensa, por exemplo). A faixa de coincidências deve ser ajustada às flutuações de tempo de formação dos pulsos (*jitter*) nas duas vias, situando-se, normalmente, na faixa de $\pm 1$ $\mu$s (total de 2 $\mu$s).

Normalmente, realizam-se medidas com a amostra radioativa de interesse e para a contagem de fundo, para cálculo das taxas líquidas em cada via. Também devem ser efetuadas correções para tempo-morto, decaimento e coincidências acidentais ou espúrias.

### 3.2.1 Sistemas de Medida de Coincidências Convencionais

A categoria de Sistemas Convencionais utiliza módulos eletrônicos usuais em medidas nucleares, como os sistemas utilizados no LMN, descritos a seguir. O ajuste de discriminação de pulsos e do tempo de coincidências deve ser realizado antes da medida.

#### 3.2.1.1 Sistema Convencional com Contadores do LMN

O sistema com contadores, citado no capítulo 1, é amplamente empregado em medidas de coincidências. O diagrama em blocos do sistema utilizado no LMN [28, 36] pode ser visto na FIG. 3.2, à página seguinte. A linha tracejada vertical espessa separa o arranjo de detecção, à esquerda, do sistema de medida propriamente dito, à direita. A detecção é realizada por um contador proporcional a gás, em geometria $4\pi\beta$, e um cintilador de iodeto de sódio, NaI(Tl), acoplado a um tubo fotomultiplicador, na via $\gamma$. Cada via, $\beta$ e $\gamma$, é formada pelo respectivo discriminador e contador de pulsos. A contagem de coincidências é obtida de um módulo especial, de mesmo nome.

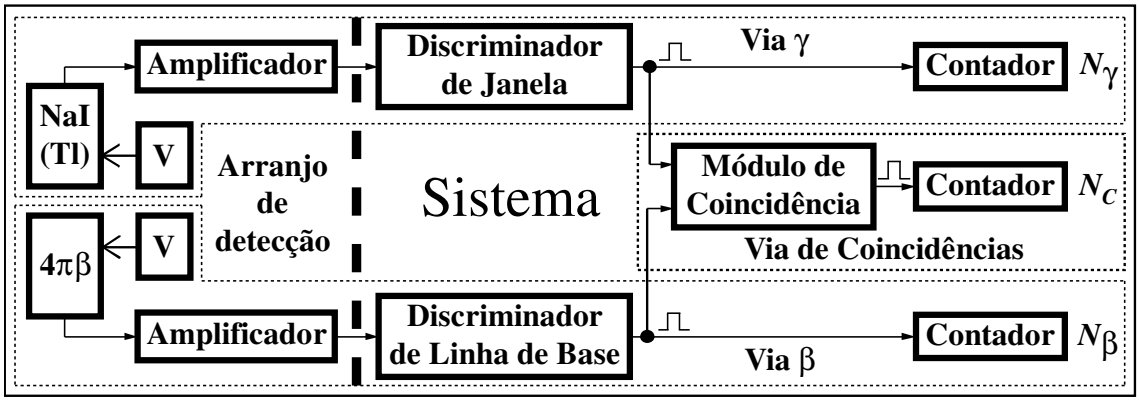



**FIGURA 3.2 – Diagrama em blocos do sistema de medida de coincidências convencional com contadores instalado no LMN.**

### 3.2.1.2 Sistema Convencional com Módulo TAC do LMN

O LMN utiliza um sistema convencional que emprega um módulo TAC [16, 36], *Time to Amplitude Converter*, que difere basicamente do apresentado na seção 3.2.1.1 na forma de registrar as contagens de pulsos. Portas de atraso associadas ao circuito TAC viabilizam a utilização de um analisador multicanal, *Multichannel Analyzer* – MCA, para que as contagens sejam obtidas em forma de espectro, incluindo a distribuição de tempos dos pares de eventos coincidentes. O diagrama em blocos, FIG. 3.3, esquematiza o arranjo de detecção #2 do LMN e o sistema TAC. A via γ é constituída por dois detectores de NaI(Tl), cujos sinais são somados analogicamente, de modo a aumentar a eficiência de contagem, normalmente muito menor do que a da via β.

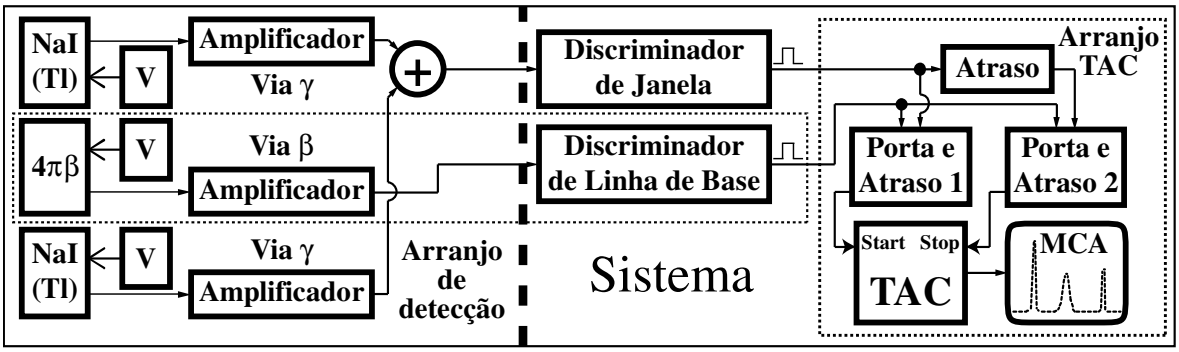



**FIGURA 3.3 – Sistema de medida convencional com módulo TAC instalado no LMN.**

O módulo TAC possui duas entradas lógicas, *Start* e *Stop*, e uma saída analógica. A amplitude do pulso de saída é diretamente proporcional ao tempo entre os sinais *Start* e *Stop*: conversão de tempo em amplitude (TAC, em inglês). O sistema de coincidência TAC está configurado de modo a produzir (preferencialmente) pulsos em três regiões distintas de amplitudes. Os sinais de *Start* e *Stop* podem provir de duas vias diferentes (coincidência) ou de uma única via. Quando um pulso $\beta$ de *Start* (ou $\gamma$) é seguido do correspondente *Stop*, um $\gamma$ (ou $\beta$), o TAC produz um pulso de amplitude média (coincidência). Quando um pulso de *Start*, $\beta$ ou $\gamma$, ocorre sem seu correspondente de coincidência da outra via, o sinal de *Stop* é dado pelo próprio pulso de *Start* atrasado. O atraso é diferente em cada via, de modo a produzir pulsos no início do espectro (menores amplitudes: pico de contagem $\beta$) ou no final do mesmo (maiores amplitudes: pico de contagem $\gamma$).

A FIG. 3.4 mostra um espectro típico de dois mil canais, obtido em MCA com o sistema de medida TAC. A contagem de coincidências é dada pela área do pico central. As contagens de eventos isolados (não coincidentes) são obtidas pelas áreas do primeiro e terceiro picos, $\beta$ e $\gamma$ respectivamente. Para obter as contagens totais de eventos deve-se somar a contagem de coincidências. O eixo das abscissas (canais) pode ser calibrado em escala de tempo de acordo com os ajustes do sistema TAC, de forma que o pico central do espectro fornece a distribuição de tempos de coincidência.

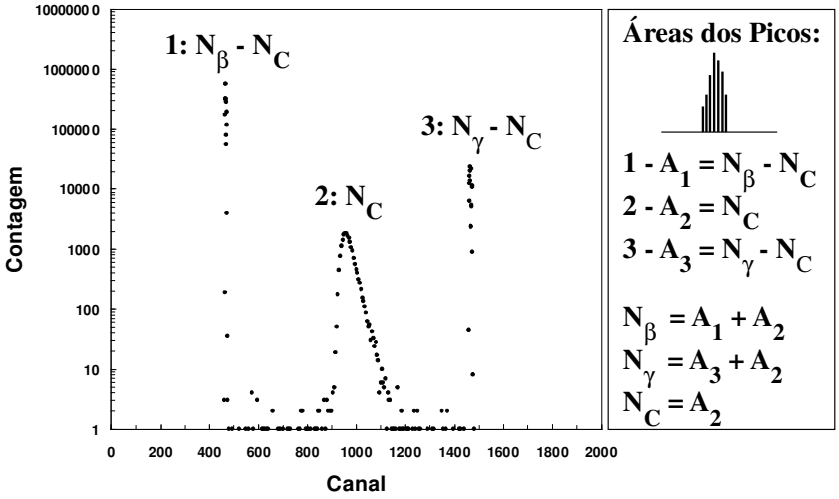



**FIGURA 3.4 – Espectro de contagens típico obtido com sistema TAC.**

### 3.2.2 Sistemas de Medida de Coincidências com Técnicas de Análise por *Software*

A categoria de Sistemas Digitais, como já mencionado, efetua o registro das informações essenciais de digitalização dos pulsos de detecção (fase de aquisição), para processamento posterior, com um programa apropriado (fase de análise). Diversas abordagens e configurações são possíveis, podendo-se preservar as formas completas dos pulsos ou apenas suas alturas e instantes de ocorrência, conforme a necessidade. Um dos sistemas descritos nesta categoria inclui módulos convencionais, entregando parte das tarefas ao *hardware*, com uma consequente simplificação de *software*. Esta prática impõe alguns limites que restringem o potencial da técnica.

Idealmente, os módulos discriminadores, portas e atrasos, contadores, TAC e MCA devem ser dispensados, e substituídos por algoritmos específicos no programa de análise, de modo que a configuração dos sistemas digitais seja compacta. Nestes sistemas, a aquisição de dados inclui todos os pulsos, sem discriminação prévia. Apenas os pulsos na região de ruído são excluídos (baixas amplitudes), para evitar o armazenamento de informação irrelevante, reduzindo o tamanho dos arquivos de dados e o tempo de processamento. Então, a seleção dos pulsos que serão efetivamente computados é realizada na fase de análise, definindo-se os níveis de discriminação, a resolução de tempo de coincidências e o tempo-morto da medida, por parâmetros de programa (variáveis de entrada). Na prática, o programa de análise desempenha funções antes entregues aos módulos nucleares dos sistemas convencionais, sendo possível criar diferentes sistemas virtuais, e proceder a um refinamento de parâmetros de análise, para obtenção de melhores resultados, a partir de um mesmo conjunto de dados.

Atualmente, dispõe-se de grande diversidade de circuitos e equipamentos para aquisição de dados, baseados na amostragem de sinais analógicos e conversão para formatos digitais (binários). A tendência atual consiste em utilizar placas ou módulos especiais, de complexidade variável, conectados a microcomputadores, para a criação de diversos tipos de instrumentos de medida, análise, controle e supervisão, aplicáveis a diversas áreas.

### 3.2.2.1 Sistema de Coincidência Digital: DCC

*Digital Coincidence Counting System* (DCC) [29, 30] foi desenvolvido pelos laboratórios ANSTO e NPL, tornando-se um produto comercial. A FIG. 3.5 foi adaptada a partir das referências indicadas, apresentando DCC de forma simplificada.

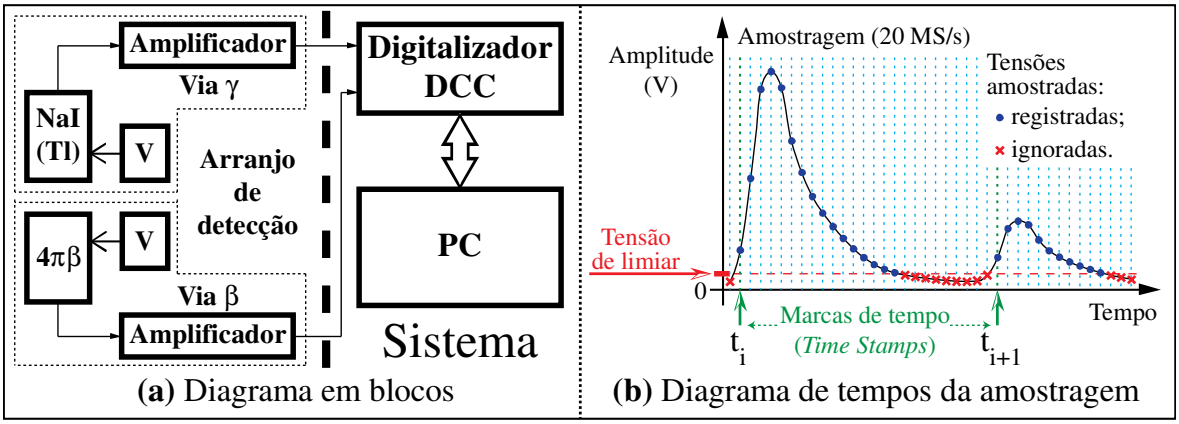



**FIGURA 3.5 – Sistema DCC: (a) diagrama em blocos simplificado; (b) esquematização da técnica de amostragem de sinais e armazenamento de informações.**

DCC possui dois canais para pulsos de detecção, β e γ, por exemplo, conforme mostra a FIG. 3.5 (a). Os sinais são digitalizados a uma taxa de 20 MS/s (20 milhões de amostragens por segundo – *Mega Samples/s*: resolução de tempo de 50 ns). A resolução de conversão de amplitude (ADC) é de doze bits. De acordo com as especificações, os pulsos devem ter largura de 1 μs, com uma taxa de até 20 kHz por canal. O tamanho máximo dos arquivos é de 2 GB. O esquema na FIG. 3.5 (b) mostra que os valores digitalizados de tensão são armazenados em arquivos somente quando estiverem acima do limiar previamente ajustado. Estes dados correspondem ao pulso propriamente dito, sendo que a informação correspondente à linha base (ausência de pulso) ou ruído é descartada, de modo a tornar os arquivos de dados mais compactos. O instante correspondente ao início de aquisição de um pulso (primeira amostragem acima do limiar, ou *Time Stamp*) também é registrado. Com as informações de instante e forma de cada pulso é virtualmente possível reconstituir os sinais originais de detecção, para cada medida.

A análise para padronização da amostra radioativa de interesse é efetuada no sistema DCC, após aquisição dos dados, por meio de um programa apropriado. Na versão referenciada, este *software* foi desenvolvido em LabVIEW 6i, incluindo funções avançadas criadas com Borland C++, como bibliotecas dinâmicas (*Dynamic Link Library* – DLL), para emulação de módulos convencionais.

A digitalização de sinais a 20 MS/s exige circuitos de relativa complexidade e um sistema de armazenamento de massa com capacidade de vários Gigabytes (HD, CD, DVD, flash drive). O custo de tais sistemas é justificável nos casos em que se necessite medir atividades da ordem de 30 kBq. Para as necessidades do LMN, foi possível estabelecer um projeto relativamente mais simples, sendo que as especificações de SCS estipulam medidas de atividades com valor máximo em torno de 3 a 5 kBq. Dessa forma, foi possível adotar uma taxa de amostragem mais baixa, de 2,5 MS/s, com a consequente redução do tamanho máximo dos arquivos de dados a cerca de 300 MB por hora de medida. À exceção desta e de outras diferenças de concepção, essencialmente, SCS guarda grande semelhança com o sistema DCC, aqui apresentado.

#### 3.2.2.2 Sistema de Contagem de Coincidência por *Software*: SCC

A referência [31] apresenta o *Software Coincidence Counting* (SCC), sistema projetado para o registro de quatro canais de pulsos, empregando módulos nucleares convencionais, como discriminadores e conversores analógico/digital, associados a um circuito eletrônico para controlar a aquisição e enviar os dados a um microcomputador PC XT, operando em plataforma DOS. Mais simples do que DCC, apresentado na seção 3.2.2.1, SCC adota a estratégia de registrar apenas os valores de amplitude, em lugar de toda informação necessária à reconstituição dos pulsos. Esta técnica reduz significativamente o tamanho dos arquivos de dados, sendo, na prática, suficiente para estabelecer a metodologia de análise de coincidências por *software* (alternativa adotada pelo LMN, no projeto de SCS). Em SCC, a informação de tempo também é registrada de forma diferenciada, armazenando-se os intervalos de tempo entre dois pulsos consecutivos, em lugar dos '*Time Stamps*'. O sistema SCC pode ser visto na FIG. 3.6, em reprodução adaptada da própria referência.

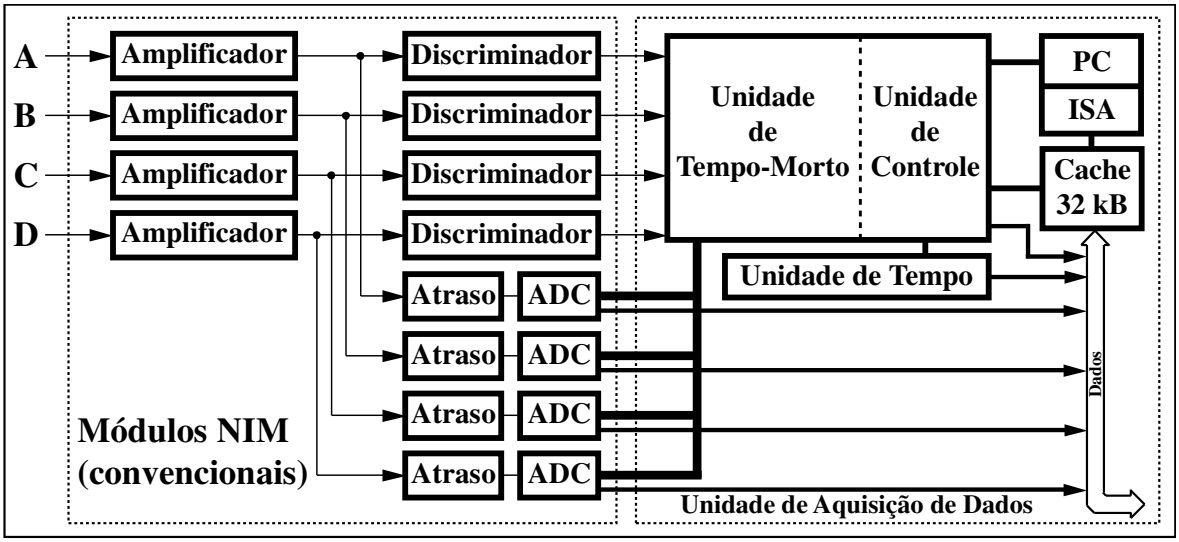



**FIGURA 3.6 – Diagrama em blocos de SCC, composto por módulos convencionais e unidade de aquisição de dados conectada a um computador pessoal (PC).**

O processo de registro de pulsos em SCC pode ser iniciado por qualquer canal. Então o sistema aguarda durante 2 μs por um possível pulso coincidente em outro canal, que também é registrado. Caso os pulsos consecutivos ocorram após a faixa de 2 μs, o pulso que iniciou o processo é registrado como evento isolado, ou não coincidente. Depois do intervalo de coincidência de 2 μs, o sistema dispara um intervalo subsequente de 8 μs, no qual nenhum registro é realizado, totalizando um tempo-morto fixo de 10 μs.

O sistema de aquisição adotado em SCC assemelha-se aos sistemas convencionais, utilizando módulos eletrônicos usuais. Esta estratégia simplifica o desenvolvimento de *software*, prefixando o tempo de resolução de coincidências em ±2 μs e o tempo-morto de medida em 10 μs. Entretanto, os ajustes dos níveis de discriminação devem ser realizados antes da medida, nos respectivos módulos, da mesma forma que nos sistemas convencionais. Embora estas características sejam apropriadas a grande parte dos casos, o LMN estabeleceu o objetivo de padronizar radionuclídeos com níveis de transição metaestáveis com meias-vidas superiores a 2 μs. Por esse motivo, as simplificações adotadas em SCC foram consideradas incompatíveis com as necessidades deste laboratório. As características de SCS permitem que os ajustes para análise sejam efetuados de maneira flexível, como se pode constatar no decorrer deste trabalho.

### 3.2.2.3 Sistema de Coincidência por *Software* Desenvolvido no LMN: SCS

Esta seção descreve o Sistema de Coincidência por *Software* – SCS, desenvolvido no LMN [32]. SCS concretiza a proposta de criar um sistema digital próprio, para medida de coincidências com análise por *software*, de modo a ampliar o elenco de radionuclídeos padronizados no LMN. Este sistema ainda permite a execução de diferentes tipos de análise de coincidências entre eventos nucleares ($\alpha$-$\gamma$, $\beta$-$\gamma$, $\gamma$-$\gamma$), ou não nucleares. SCS utiliza a técnica de instrumentação virtual (*Virtual Instrument*, VI), amplamente empregada na atualidade, e que consiste em desenvolver instrumentos utilizando-se microcomputadores. Desta forma, desfruta-se de grande capacidade de processamento e armazenamento de dados, e de diversos recursos multimídia para as interfaces homem-máquina. A técnica oferece outras vantagens, com obtenção de excelentes resultados, inclusive no estabelecimento de padrões experimentais (*benchmarks*) [37]. Normalmente, utilizam-se placas ou módulos eletrônicos capazes de processar sinais elétricos, analógicos ou digitais, conectados a microcomputadores. Diversos tipos de transdutores (temperatura, pressão, vibração, luz, entre outros) podem ser empregados como sensores ou atuadores, possibilitando o desenvolvimento dos mais variados tipos de instrumentos de medida, e de supervisão e controle de processos, de maneira compacta, eficiente e confiável.

Durante a aquisição, SCS efetua a digitalização dos sinais, cuja reconstituição é realizada por uma VI de detecção de pico (v. anexo A, FIG. A2: *VI Peak-Detect*), de modo a obter os instantes de ocorrência e as amplitudes de cada pulso, com exatidão e precisão apropriadas. Estas informações são registradas em arquivos independentes para cada entrada, em formato ASCII, e a medida é realizada com tempo-morto virtualmente nulo. Deste modo, um conjunto de dados guarda o status essencial dos sinais de detecção de toda a medida, sem a discriminação prévia (típica em sistemas convencionais), sendo possível efetuar a reconstituição dos pulsos a qualquer instante. Com critérios adequados para a seleção dos pulsos (v. capítulo 4), é possível simular diferentes tipos de sistemas de medidas e obter resultados para diferentes ajustes de discriminação de amplitudes, tempo de coincidências e tempo-morto, durante o processamento dos arquivos de dados.

SCS utiliza dispositivos e *software* da *National Instruments* [38]: placa de aquisição de dados modelo NI PCI-6132 (*S Series Multifunction DAQ*), instalada em um microcomputador pessoal; painel de conexão BNC-2110; cabo 184749-01; programa NI LabVIEW 2010 *Platform*. Os sinais dos arranjos de detecção 4πβ-γ do LMN são conectados ao painel BNC-2110 e levados à PCI-6132 pelo cabo 184749-01. A configuração de SCS esquematizada na FIG. 3.7 é simples, se comparada às dos sistemas convencionais. Dispensam-se os módulos nucleares como discriminadores, conversores analógico/digital (ADC), contadores, conversores de tempo em amplitude (TAC), ou analisadores multicanal (MCA), cujas funções podem ser realizadas por algoritmos especialmente desenvolvidos, integrantes do *software* de análise.

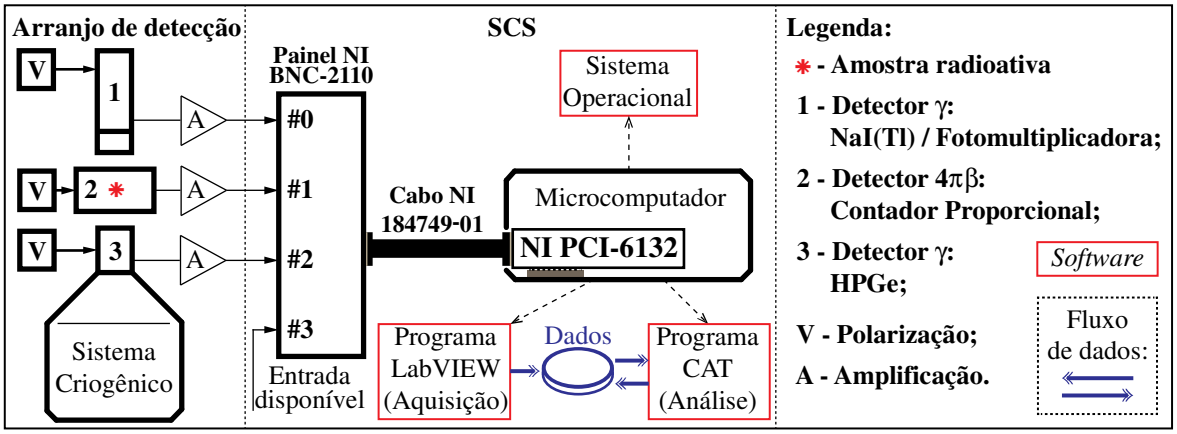



**FIGURA 3.7 – Diagrama em blocos do Sistema de Coincidência por *Software*, SCS, desenvolvido no LMN.**

As características principais da placa NI PCI-6132 são [38]:

- quatro entradas analógicas independentes, com faixas de ±1,25 a ±10,0 V, com amostragem simultânea de até 2,5 MS/s (3,0 MS/s em modo *warp*, com sinal de relógio externo), permitindo a conexão de até quatro detectores;
- dois contadores de 24 bits, com gatilho analógico ou digital, que podem ser configurados em série;
- sinal interno de relógio de 20 MHz, com 0,01% de exatidão;
- memória interna, com capacidade de armazenamento de até 16 MS.

Com o *software* NI LabVIEW desenvolveu-se o programa de controle da aquisição de dados e configuração de sistema. A taxa de amostragem foi configurada em 2,5 MS/s, máximo obtido com sinal de relógio interno. Esta taxa é adequada à digitalização de pulsos com larguras entre 2,5 a 3,0 μs, conforme especificações de SCS. O programa de aquisição dispõe de um painel (v. anexo A, FIG. A1: interface gráfica de usuário, GUI, no equivalente em inglês) com controles e indicadores (*widgets*) para ajuste de parâmetros (tempo de medida, níveis de limiar de rejeição de ruído), visualização do status numérico e gráficos, e controle de medida (comandos de início e interrupção). A lógica de aquisição é obtida com recursos de programação gráfica, conectando-se blocos funcionais e VIs, em um diagrama de blocos (v. anexo A, FIG. A2). Embora apenas o instante e a altura dos pulsos sejam preservados na abordagem atual, para aplicações futuras, SCS pode ser reconfigurado para efetuar o registro completo da digitalização. Deste modo, dispondo-se de todos os valores amostrados de tensão instantânea, é possível dotar o programa de análise de algoritmos para identificação da forma dos pulsos. Por exemplo, pode-se determinar a largura a meia-altura dos pulsos (além de suas alturas), os tempos de subida e descida ou identificar pulsos saturados.

Os sinais das vias de detecção, β e γ, são conectados às entradas disponíveis, para obtenção de até quatro arquivos de dados (objeto da metodologia em questão), sendo possível efetuar o registro simultâneo dos sinais de quatro detectores, ou de outras fontes auxiliares. Neste trabalho, utilizou-se o arranjo nuclear #1 (v. capítulo 4), composto por um detector proporcional (4πβ) e dois detectores γ (semicondutor HPGe, para alta resolução em energia e cintilador NaI, para maior eficiência). Virtualmente, é possível utilizar dois arranjos de detecção, para a padronização simultânea de duas amostras.

Os arquivos são compostos por registros de dois campos de dado: instante ($\mathbf{t_i}$) e amplitude ($\mathbf{h_i}$). Cada registro representa um pulso de detecção na respectiva via, sendo agrupados em blocos de aquisição de um segundo. O número total de blocos de um arquivo corresponde ao tempo da medida, em segundos. Registram-se apenas os pulsos com amplitudes acima de valores limiares, que podem ser ajustados independentemente, para cada uma das quatro entradas. A TAB. 3.1 apresenta um fragmento de arquivo de medida realizada com SCS.

**TABELA 3.1 – Fragmento de arquivo de dados obtido com SCS, formado por registros de dois campos: Instante e Altura de pulso [incerteza].**

| Instante ($\times 4{,}0\times 10^{-7}$ s) [±0,01%] | Amplitude (V) [±0,6%] |
|---|---|
| **3219.021536** | **3.717343** |
| **4599.977238** | **4.597585** |
| **5014.157143** | **0.451329** |
| **5469.619205** | **4.544232** |
| **5617.044828** | **0.950063** |
| **8187.405213** | **0.640043** |
| **12531.774194** | **0.248512** |

Os campos de instantes indicam valores de tempo relativos ao número da amostragem. Em cada bloco de um segundo, a contagem de tempo é reiniciada na 'amostragem 1', terminando na 'amostragem 2500000'. Embora amostragens sejam números inteiros, o sinal amostrado é reconstituído por transformada rápida de Fourier (*Fast Fourier Transform* – FFT), de forma que a posição do pico é calculada no formato de ponto flutuante (não negativo). O instante em segundos é obtido multiplicando-se o valor registrado pelo período do sinal de amostragem (f = 2,5 MHz $\Rightarrow$ T = $4{,}0\times 10^{-7}$ s). A altura de pulso é registrada em uma faixa nominal de 0 a 10 V. As estruturas de dados (campos de dados, registros, blocos de 1 s e arquivo completo) são esquematizadas na FIG. 3.8. Há uma correspondência biunívoca entre os blocos dos arquivos de cada via, para cada segundo de aquisição (totalizando o tempo da medida).

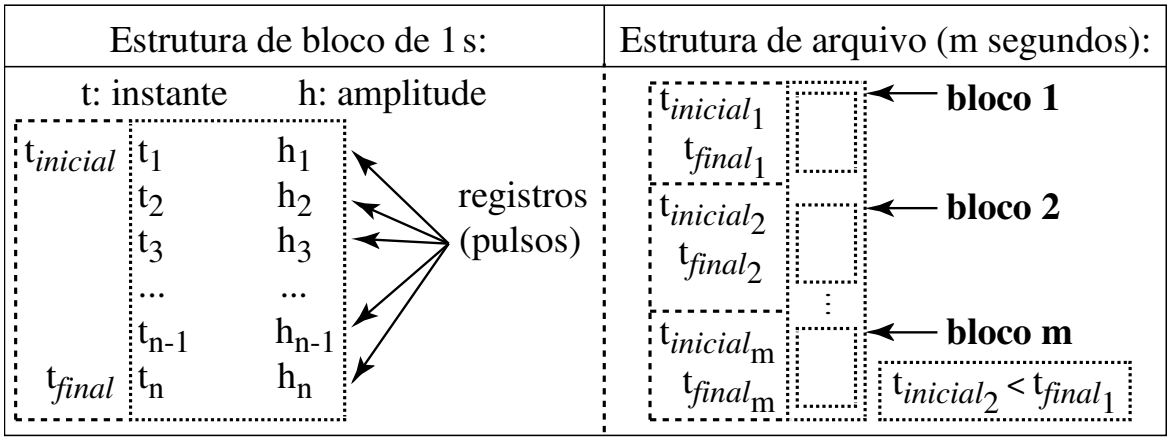



**FIGURA 3.8 – Estruturas dos registros, dos blocos de registros e do arquivo de dados.**

A aquisição de dados é realizada de forma simples e rápida, sendo desnecessário efetuar planejamento prévio. É suficiente realizar uma aquisição de dados para a amostra de interesse e outra para a radiação de fundo (sem amostra, para correção de *Background* – BG). Como enfatizado, apenas os pulsos abaixo de valores de limiar (região de ruído) são rejeitados durante a aquisição, e os ajustes necessários são realizados na fase de análise (discriminação de pulsos, resolução de coincidências e tempo-morto), sendo que a seleção de pulsos efetivos é realizada com grande flexibilidade, de acordo com as amplitudes e instantes registrados.

Para a implantação e utilização de SCS, desenvolveu-se um pacote de *software* básico [39, 40], para a análise dos dados e padronização de radionuclídeos simples, como o $^{60}$Co. Na análise, realiza-se a leitura dos arquivos de dados SCS, para a determinação das taxas de contagens de pulsos nas duas vias, β e γ, e da taxa de coincidências entre esses eventos, para cálculo da atividade, utilizando-se a expressão 3.4. O processo é repetido, reduzindo-se gradativamente a região efetiva de pulsos β (discriminação por amplitude de pulso), de forma a diminuir a eficiência de contagem desta via ($\varepsilon_\beta = N_C / N_\gamma$). O número de iterações ($1 \leq i \leq n$) e os respectivos níveis de discriminação são definidos como parâmetros do programa de análise, obtendo-se $n$ valores de atividade, $y_i$, e os respectivos fatores de ineficiência, $[x = (1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta]_i$. Com estas informações, utilizando-se um aplicativo matemático, efetua-se um ajuste linear (expressão 3.7) para obtenção da atividade, $N_0$, pelo método da extrapolação descrito na seção 3.1.2.1.

Desde os primeiros resultados, ficou demonstrado que o potencial desta técnica é praticamente ilimitado, propiciando a elaboração e aprimoramento contínuo de algoritmos para tratamento de dados e a realização de diferentes análises com um único conjunto de arquivos (determinação de atividade, meia-vida de níveis metaestáveis, probabilidades de emissão gama, ou outras grandezas). Deste modo, é possível adaptar o processo de análise a cada caso específico, estabelecendo-se os critérios e a lógica apropriados. Como exemplo, há casos em que se deve manter mínimo o tempo-morto da medida e casos em que essa grandeza deve ser maximizada, para rejeição de eventos atrasados de níveis metaestáveis. Estes aspectos são abordados com mais propriedade nos capítulos 4 e 5.

# 4 METODOLOGIA DE ANÁLISE POR *SOFTWARE*

A utilização de sistemas digitais para medidas de coincidências traz inúmeras vantagens, sendo relevante o fato de que os ajustes necessários são efetuados depois da aquisição dos dados, por meio de parâmetros de *software*. Deste modo, é possível realizar ajustes que seriam inviáveis em sistemas convencionais (v. seção 4.2), e obter famílias de resultados para um único conjunto de dados. Com um sistema convencional, é necessário realizar várias medidas, efetuando-se reajustes nos módulos eletrônicos e qualquer equívoco pode causar a perda de uma medida. Por estas razões, o LMN desenvolveu seu próprio sistema digital, SCS, descrito na seção 3.2.2.3, incluindo o *software* básico, para padronização de radionuclídeos com esquemas de decaimento simples (como o $^{60}$Co). O presente capítulo descreve a metodologia de análise de dados SCS, desenvolvida neste trabalho para incluir radionuclídeos com esquemas de decaimento complexos, como o $^{152}$Eu e o $^{67}$Ga. O capítulo inclui aspectos considerados relevantes, do desenvolvimento à aplicação, sendo estruturado da seguinte maneira:

- Seção 4.1 – Apresentação sucinta da infraestrutura utilizada;
- Seção 4.2 – Métodos e algoritmos básicos para seleção de pulsos efetivos;
- Seção 4.3 – Aplicativo integrado de análise de coincidências CAT;
- Seção 4.4 – Outros recursos de *software* utilizados no processo de análise;
- Seção 4.5 – Aplicação: padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga.

## 4.1 Infraestrutura

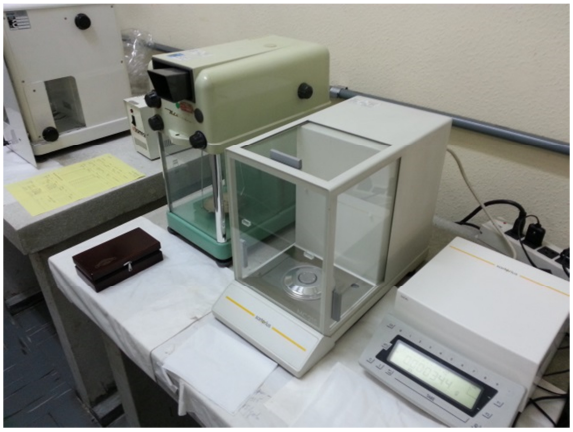
O LMN desempenha diversas tarefas relacionadas à produção de fontes radioativas padrão e à execução de medidas metrológicas, como a padronização de radionuclídeos, dispondo de infraestrutura adequada. Os recursos principais utilizados no decorrer deste trabalho são apresentados nesta seção.

### 4.1.1 Equipamentos

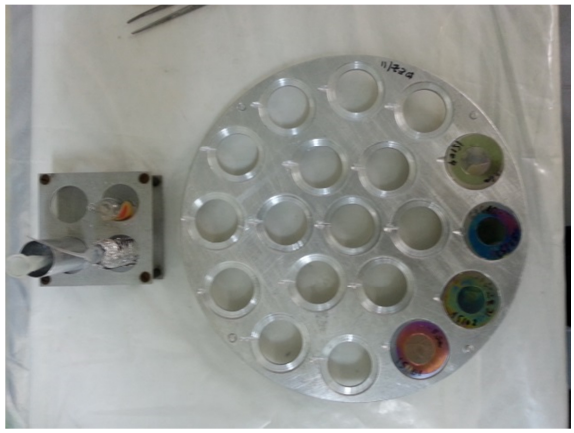
Os principais equipamentos do LMN (produção de fontes, detecção, eletrônica e sistemas) são enumerados abaixo (com ilustrações nas FIG. 4.1 a 4.5):

- Sistema de confecção de fontes radioativas constituído de: Balança Microanalítica digital modelo Sartorius MC 21S com sensibilidade de 20 μg, FIG. 4.1 (b); capela para manuseio do material radioativo; estufa para secagem de materiais; metalizadora para a deposição de ouro nos substratos das fontes, FIG. 4.1 (a);
- Detectores de cintilação γ, cristais de NaI(Tl) com 50,8 mm de comprimento por 50,8 mm de diâmetro, tubos fotomultiplicadores e eletrônica associada (polarização e amplificação), FIG. 4.3 (a) e (b);
- Detector γ coaxial HPGe, Intertechnique EGC20 com 50,2 mm de comprimento e 51,2 mm de diâmetro (Arranjo de detecção #1), FIG. 4.3 (a);
- Detector γ coaxial REGe, Canberra GR1520 (Espectrômetro γ) com 45,5 mm de comprimento e 46,5 mm de diâmetro, FIG. 4.2;
- Detectores proporcionais a gás fluente ou pressurizado, em geometria 4π, para detecção de elétrons e partículas β, FIG. 4.3;
- Bastidores montados em estruturas metálicas, para a conexão de módulos eletrônicos NIM, FIG. 4.4 (a);
- Diversos módulos eletrônicos NIM: amplificadores de espectroscopia; discriminadores; TAC; fontes de alta tensão; pulsadores nucleares; portas e atrasos, FIG. 4.4 (a);
- Analisadores Multicanal (MCA) Ortec equipados com *software* Maestro;
- Computadores PC com SO MS-Windows;
- Osciloscópios, fontes de alimentação, geradores de sinais de bancada e similares;
- Sistema de Coincidência com Contadores, FIG. 4.4 (b);
- Sistema de Coincidência com Módulo TAC, FIG. 4.4 (c);
- Sistema de Coincidência por *Software* – SCS, FIG. 4.5.

**(a)** Sistema para metalização de fontes radioativas.



**(b)** Balança Microanalítica .



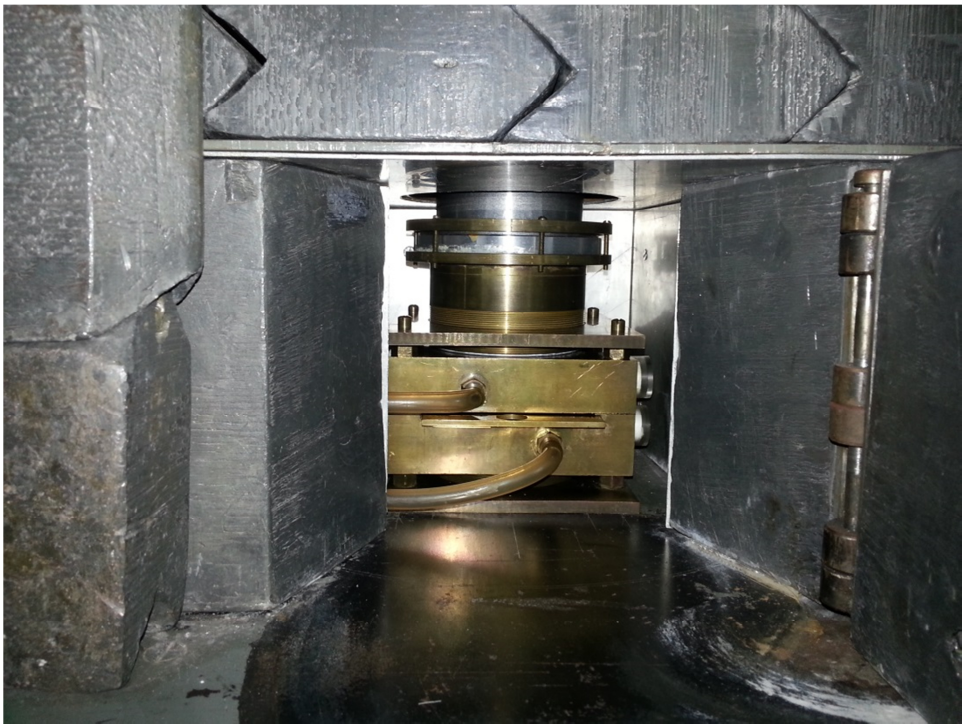
**(c)** Amostras radioativas para o sistema 4πβ–γ.

**FIGURA 4.1 – Equipamentos para produção de fontes radioativas do LMN.**

**FIGURA 4.2 – Espectrômetro gama de germânio hiperpuro do LMN, com alta resolução em energia (REGe).**

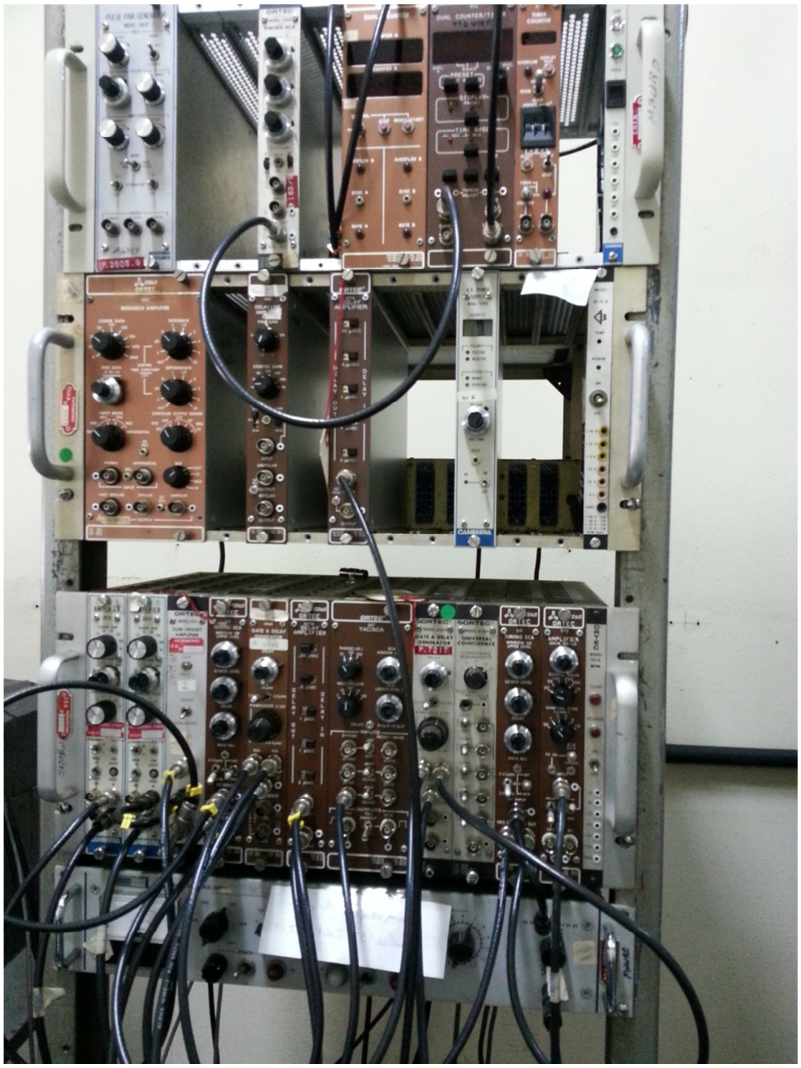
**(a)** Arranjo de detecção #1 (NaI; 4πβ; HPGe).

**(b)** Arranjo de detecção #2 (NaI; 4πβ; NaI).



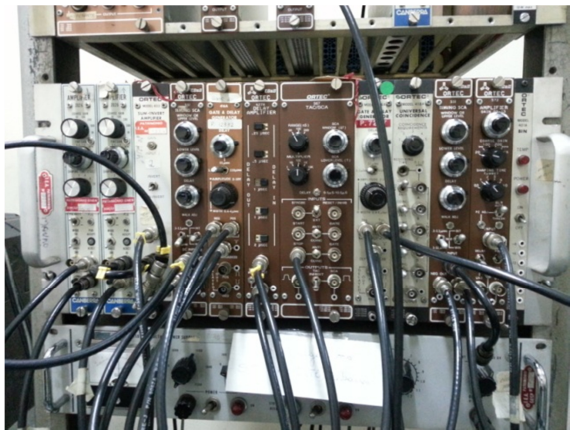
**(c)** Destaque para o contador proporcional (4πβ) do arranjo de detecção #2.

**FIGURA 4.3 – Arranjos de detecção do LMN, para medidas de coincidências.**



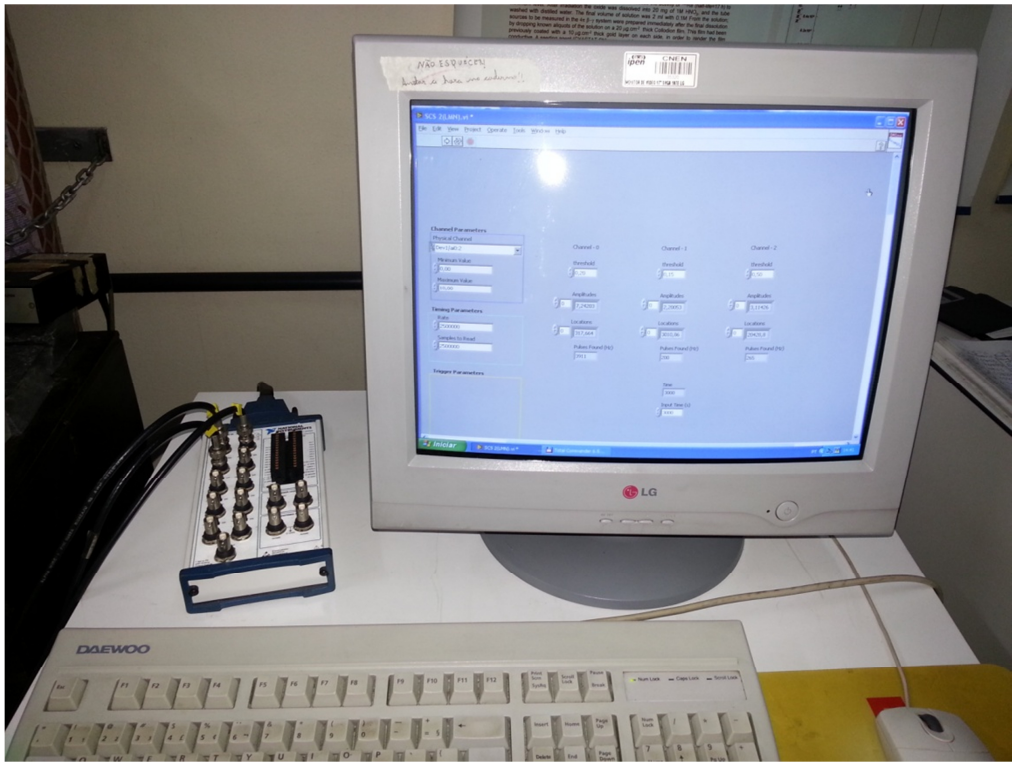
**(a)** Estrutura metálica com bastidores e módulos eletrônicos nucleares.

**(b)** Sistema de coincidência com contadores.



**(c)** Sistema de coincidência com módulo TAC.

**FIGURA 4.4 – Eletrônica modular e sistemas convencionais de coincidências.**




**(a)** Painel de conexão e tela do programa de aquisição em LabVIEW.

**(b)** Destaque do painel de conexão BNC-2110 (NI).

**FIGURA 4.5 – SCS: Sistema de Coincidência por *Software* desenvolvido no LMN.**

### 4.1.2 *Software*

O LMN dispõe de programas usuais e várias ferramentas, incluindo *software* desenvolvido no próprio laboratório, para ajuste de curvas, simulação por Monte Carlo, entre outras, podendo-se citar:

- Suite para escritório MS-Office (Word, PowerPoint, Excel);
- Editores gráficos (MS-Paint, GIMP, Inkscape e outros);
- Programas Maestro da Ortec – PHA (espectrometria);
- Programas desenvolvidos no LMN [12, 39-47];
- Programa MCNP5 – simulação do transporte de radiação por Monte Carlo [48];
- Pacotes Matemáticos (Origin 4.00 [49] e Wolfram Mathematica 9 [50]);
- Programas para desenvolvimento de *software* (**Fortran**, **Basic**, **C/C++**).

### 4.1.3 Amostras Radioativas

O LMN possui várias fontes padrão em diversas geometrias (frascos diversos, discos selados ou em arandelas de aço inoxidável). O presente trabalho utilizou fontes em arandelas produzidas no próprio LMN, em geometria apropriada às medidas nos sistemas $4\pi\beta$–$\gamma$ de coincidência, a saber:

- amostra de $^{60}$Co, utilizada apenas na fase inicial do desenvolvimento de CAT;
- amostra de $^{152}$Eu, descrita na seção 4.5.1;
- cinco amostras $^{67}$Ga, identificadas na seção 4.5.2;
- amostra adicional de $^{67}$Ga de maior atividade (~730 kBq: v. seção 4.5.2.3).

As fontes produzidas para as medidas nos sistemas de coincidências $4\pi\beta$-$\gamma$, como as enumeradas acima, são obtidas por diluição de uma solução matriz. Uma fração da solução obtida é depositada em um filme delgado (10 a 20 $\mu$g cm$^{-2}$) de COLLODION (nitrato de celulose), suportado por uma arandela de aço inox, um aro com 4,0 e 2,0 cm de diâmetro

externo e interno (orifício) e 0,1 mm de espessura. A deposição é feita no centro do disco interno (filme polimérico), utilizando-se um frasco plástico com um tubo capilar (picnômetro), resultando em massa total da ordem de 20 a 47 mg, após secagem. Os diâmetros e espessuras finais também variam, de modo que a eficiência de contagem pode ser afetada (fato relevante, abordado na seção 5.2.2). Antes da deposição, efetua-se a metalização do substrato com uma camada de ouro, com cerca de 10 $\mu g\,cm^{-2}$, para equalizar o potencial elétrico em toda superfície da fonte (o polímero é isolante elétrico). A arandela metálica é apoiada em um orifício circular com rebaixo de uma gaveta de latão em potencial de catodo. Com a equalização do potencial elétrico, o campo elétrico no detector torna-se mais homogêneo, de forma que se obtém um ganho de eficiência de contagem de cerca de 10 a 20%.

## 4.2 Desenvolvimento de Algoritmos para a Análise por *Software*

Esta seção apresenta as técnicas básicas para o desenvolvimento da metodologia de análise de coincidências por *software*. Para produzir resultados aceitáveis, é necessário combinar lógica e adequadamente estes métodos, considerando-se o rigor metodológico apresentado no capítulo 3. Também é possível estabelecer processos iterativos de análise e criar métodos específicos, conforme as necessidades de cada caso. As seções 4.3 a 4.5 abordam este tema, expondo a integração lógica de métodos elementares, idealizada para as aplicações estabelecidas nas metas deste trabalho.

### 4.2.1 Discriminação de Amplitude: *Software Amplitude Discrimination* – SAD

O primeiro critério seletivo estabelecido por *software* refere-se às amplitudes dos pulsos. Em um sistema de medida convencional, os sinais de detecção devidamente amplificados são entregues aos discriminadores de altura de pulso (v. FIG. 3.2, 3.3 e 3.6), de modo a produzir um pulso lógico de saída para cada pulso nuclear cuja altura está em um intervalo pré-ajustado. Esta função é realizada pelo método SAD, esquematizado pelo fluxograma da FIG. 4.6.

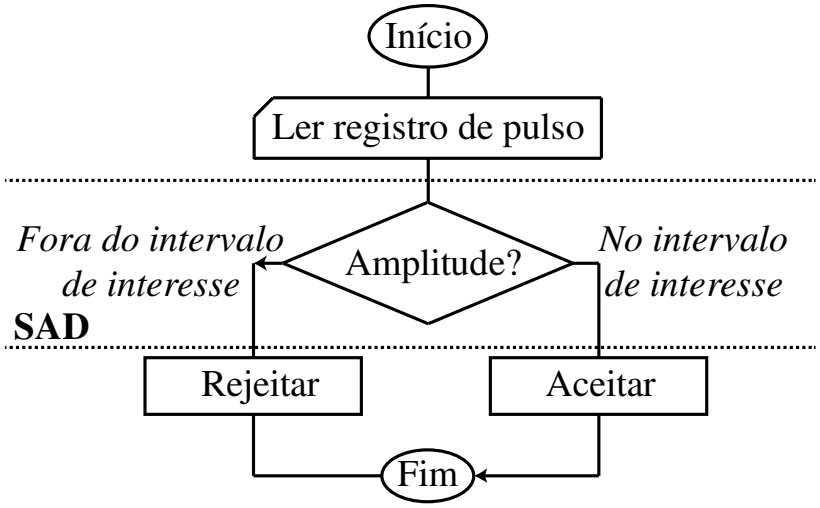



**FIGURA 4.6 – Leitura e seleção de pulsos por amplitude (algoritmo SAD).**

Para a via de contagem β, usualmente, estabelece-se um intervalo incluindo todas as amplitudes, rejeitando-se apenas os pulsos cujas amplitudes são inferiores a um valor limiar, estabelecido para o corte de ruído. O algoritmo básico de discriminação β para a obtenção da curva de extrapolação consiste em efetuar o aumento progressivo do limiar de amplitude β, em iterações (laços – v. FIG. 4.13). Desta forma, aumenta-se o intervalo de rejeição de amplitudes β, reduzindo-se a eficiência de contagem. Esta técnica é equivalente à realização de várias medidas, aumentando-se progressivamente a tensão de limiar do módulo discriminador (monocanal). Em muitos casos, como para o $^{67}$Ga, a inserção de absorvedores de elétrons na amostra é mais apropriada, para atenuar os elétrons *Auger*, prioritariamente. Este problema é abordado na seção 5.2.2.

Na via de contagem γ, normalmente, o intervalo de amplitudes dos pulsos é ajustado para selecionar uma faixa definida de amplitudes (janela), correspondente a uma região espectral de pico de absorção total de energia, para uma dada transição de interesse. Frequentemente escolhem-se as transições com probabilidades de ocorrência mais significativas. A largura dessa janela depende de diversos fatores, como a resolução em energia do detector empregado, flutuações na resolução e nos ajustes inerentes aos módulos eletrônicos empregados, causadas por variações operacionais ou ambientais (temperatura, pressão, umidade).

Como mencionado no parágrafo introdutório deste capítulo, a metodologia de análise por *software* permite que os ajustes sejam efetuados de forma flexível e precisa. Análises em alta resolução de energia γ, por exemplo, são executadas de forma simples e rápida, utilizando-se o método de discriminação apresentado. Para ilustrar, considere-se o exemplo de obter as taxas de contagens de pulsos γ, para duas transições do $^{57}$Co com energias próximas, de 122 e 136 keV. Parte da solução consiste em substituir o cintilador NaI(Tl), de baixa resolução em energia, por um detector de alta resolução, como HPGe, capaz de separar adequadamente os picos de absorção total γ das transições mencionadas. Da mesma forma, o método de discriminação utilizado deve ter resolução compatível. Os dois próximos parágrafos apresentam as abordagens para este problema, para as duas categorias de medidas, convencional e digital.

Com técnicas convencionais, a discriminação para a obtenção das áreas de cada pico é efetuada por meio de módulos eletrônicos. Entretanto, a maioria dos analisadores monocanal utilizados possui resolução inferior à dos detectores HPGe, incluindo os disponíveis no LMN, dificultando a discriminação de intervalos de energia dessa magnitude. Considerando-se um amplificador com fundo de escala de 10 V, correspondendo à energia de 2000 keV, a largura da região do pico de absorção total é da ordem de 5 keV (típica de um HPGe), ou um intervalo de amplitudes de 25 mV. A resolução de um monocanal em modo diferencial, janela γ, da ordem 70 a 100 mV, é inadequada à tarefa. O ajuste de janela torna-se crítico ou impraticável, podendo ocorrer perda ou superposição de contagens, ocasionadas por possíveis flutuações de ganho ou dos níveis de discriminação.

Em um sistema digital, a discriminação de energias é realizada na fase de análise, de forma simples e precisa, configurando-se o número dos canais, inicial e final, para cada região de interesse (ROI: picos de absorção total de energia γ). Um caso extremo e sem caráter prático (embora possível) consiste em efetuar análises que utilizam janelas de um único canal do espectro. Um espectro de mil canais possui resolução de 10 mV por canal (ou 2 keV). Considerando-se oito mil canais, obtém-se resolução de 1,3 mV por canal (~0,3 keV). Mesmo considerando-se uma flutuação da ordem de 1% no registro de amplitude de SCS (v. TAB. 3.1), é perfeitamente viável efetuar análises em alta resolução.

### 4.2.2 Tempo-Morto: *Software Dead Time* – SDT

Em um sistema convencional, os pulsos selecionados pelo critério de amplitude (módulos monocanais) são processados por outros estágios eletrônicos. Este processo ocorre em um intervalo de tempo, denominado tempo-morto ($\tau$), durante o qual os pulsos subsequentes são perdidos. O algoritmo de tempo-morto virtual, SDT, reproduz este efeito, de modo que os pulsos aceitos por amplitude (seção 4.2.1) podem ser rejeitados pelo critério do tempo-morto. Quando um pulso é aceito pelos dois critérios (SAD e SDT), estabelece-se um período de rejeição (tempo-morto estipulado por *software*), dentro do qual os pulsos subsequentes são ignorados (descartados). Esta técnica de tempo-morto 'não extensível' é ilustrada na FIG. 4.7 (SDT = $\tau$).

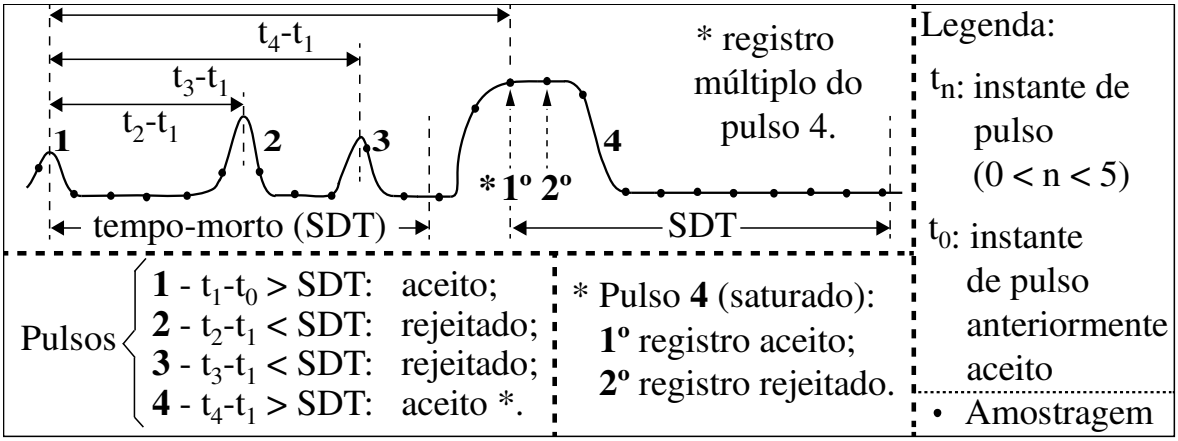



**FIGURA 4.7 – Tempo-morto virtual da medida, SDT, produzido por *software*.**

Em princípio, o tempo-morto é uma característica indesejável, responsável pela perda de pulsos. Há casos, porém, em que o tempo-morto representa uma grandeza vital, como para a padronização do $^{67}$Ga, em que os pulsos atrasados do nível metaestável devem ser rejeitados, utilizando-se tempo-morto elevado (expressão 3.11). Graças ao filtro ajustável SDT, a padronização do $^{67}$Ga pode ser realizada com apenas um conjunto de medidas por amostra (seção 4.5.2). Ainda, SCS pode efetuar o registro múltiplo de pulsos saturados (característica intrínseca da *VI Peak-Detect* utilizada), como ocorre com o pulso **4** da FIG. 4.7 (as setas tracejadas indicam registro duplo indesejado: **1º** e **2º**). Utilizando-se o método SDT (para $\tau \geq 1{,}5$ μs), este inconveniente é corrigido.

### 4.2.3 Contagem de Eventos Efetivos de Detecção

Considerando-se a estrutura dos arquivos de dados, apresentada na seção 3.2.2.3, a leitura dos registros é feita por blocos de 1 s. Como a contagem de tempo é reiniciada em cada bloco, o final de um bloco é detectado quando o conteúdo do campo de instante (*time* – t) do registro subsequente for menor do que o último valor lido.

Os pulsos cujas amplitudes (*height* – h) estão fora da faixa estabelecida são rejeitados. O primeiro pulso de cada bloco aceito por amplitude é contado e registrado em uma variável auxiliar, ***lastAccepted*** ($t_A$, $h_A$). Os instantes ($t_i$) dos registros subsequentes, aceitos por amplitude, são então comparados ao do último pulso aceito ($t_A$), conforme esquematizado na FIG. 4.7, até que seja encontrado um pulso cujo instante de ocorrência, $t_i$, satisfaça a condição de verdade para: $t_i - t_A > SDT$ (*true*); o sucesso indica que o pulso ocorreu depois do período de tempo-morto e deve, então, ser computado como válido, atualizando-se a variável ***lastAccepted***. Os pulsos cujos instantes ocorrem no período de tempo-morto são descartados. Assim, o critério completo para seleção e contagem de pulsos é ilustrado no fluxograma simplificado da FIG. 4.8, incluindo os testes SAD e SDT.

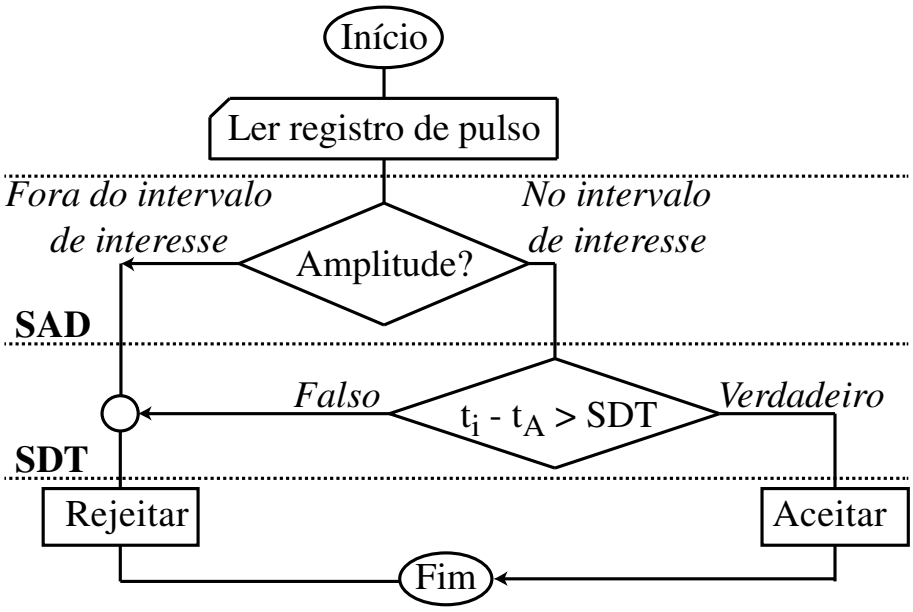



**FIGURA 4.8 – Fluxo simplificado de seleção e contagem de pulsos efetivos.**

### 4.2.4 Contagem de Eventos Coincidentes: *Coincidence Counting Algorithm* – CCA

Após a seleção dos eventos efetivos (pulsos β e γ), descrita nas seções 4.2.1 a 4.2.3, efetua-se a contagem dos pares de eventos (β/γ) em coincidência, determinando-se as diferenças entre os instantes de ocorrência para cada par. Podem ocorrer multiplicidades, onde um único evento de uma via pode estar em coincidência com dois eventos próximos da outra via. Exemplificando-se: como a eficiência de contagem $\varepsilon_\beta$ é muito maior do que $\varepsilon_\gamma$, um bloco de dados de pulsos β efetivos contém muito mais informação do que o correspondente bloco γ. Desta forma, podem existir dois candidatos β ($\beta_i$ e $\beta_{i+1}$) em possível coincidência com um único pulso $\gamma_j$. Portanto, o algoritmo de contagem de coincidências deve ser capaz de decidir qual, entre os pares candidatos, representa uma coincidência real, $\beta_i/\gamma_j$ ou $\beta_{i+1}/\gamma_j$ (eventos remanescentes podem formar outros candidatos).

Durante o processo de contagem, os pulsos aceitos são armazenados em vetores auxiliares, ***acceptedBetaVector***$_m$ e ***acceptedGammaVector***$_n$ (m pulsos β e n pulsos γ), retendo-se as informações necessárias à determinação da contagem de coincidências. Um processo iterativo simples pode ser realizado com dois laços aninhados, testando-se todas as m×n combinações possíveis de tempo entre pulsos β e γ, conforme ilustrado na FIG. 4.9.

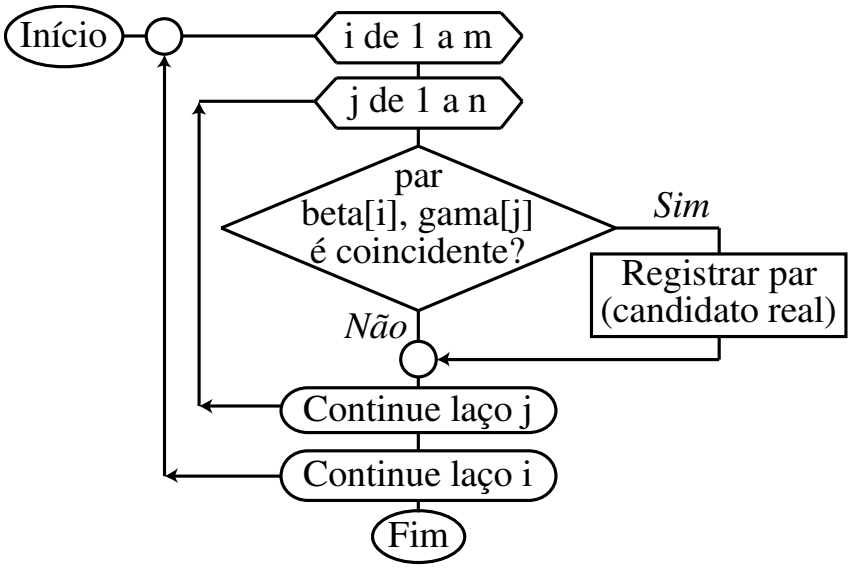



**FIGURA 4.9 – Algoritmo de dois laços para contagem de eventos β e γ coincidentes.**

O bloco 'Registrar par' na FIG. 4.9, interno aos laços (*looping*: normalmente um comando "**for**", "**do**", ou "**while**") deve incluir a capacidade de escolher coincidências reais, entre os pares candidatos. A eficiência deste algoritmo é baixa, pois efetua todas as iterações possíveis (m×n), para todas as combinações $\beta_i/\gamma_j$. Podem-se introduzir aperfeiçoamentos à técnica, interrompendo-se o laço interno quando as diferenças de tempo superem a resolução de coincidências estabelecida, ou utilizando índices iniciais crescentes a cada iteração, estabelecidos a partir da definição de coincidências reais.

Neste trabalho, desenvolveu-se um algoritmo denominado *Coincidence Counting Algorithm* (CCA), que utiliza uma estrutura tipo pilha em lugar de laços. CCA é disponibilizado pela função membro da classe ***CoincidData*** – ***CoincidData***::***analysis***(...), que recebe referências a dois objetos ***PulseData*** (dados β e γ). A indexação dos vetores de pulsos é crescente e realizada em apenas uma iteração. Esta técnica foi denominada de indexação deslizante: os índices β e γ são posicionados no início dos respectivos vetores (i = 0 e j = 0) e incrementados de acordo com o sinal da diferença ($\mathbf{\Delta_T}$) entre os instantes dos pulsos β e γ (respectivamente: $t_i$ e $t_j$, contidos nos vetores de dados). A determinação de coincidências é realizada paralelamente ao processo de indexação deslizante. Cada $\mathbf{\Delta_T}$ obtido é convertido em valor absoluto (inversão de sinal dos valores negativos: $|\mathbf{\Delta_T}|$) e comparado ao tempo de resolução de coincidências estabelecido (positivo). O primeiro valor menor ou igual ao tempo de resolução é colocado (*push*) no topo de uma pilha de candidatos, inicialmente vazia. Estes candidatos à coincidência são objetos da classe ***Trio***, que encapsula os índices, i e j, e o valor de $\mathbf{\Delta_T}$. Efetua-se então o deslizamento de índice e calcula-se o próximo valor, $|\mathbf{\Delta_T}|$, que também é empilhado se for menor do aquele no topo da pilha. Caso contrário, o valor é rejeitado, dando-se início ao esvaziamento da pilha: o topo da pilha é computado como coincidência (critério do menor $|\mathbf{\Delta_T}|$) e retirado da mesma (desempilhar: *pop*). No processo de esvaziamento da pilha, cada novo topo representa outra coincidência somente se os dois índices forem diferentes dos registrados na última coincidência (par candidato formado por eventos ainda não computados). Um índice repetido indica que o evento foi computado como coincidência em par anterior e o novo topo deve ser descartado (removido da pilha). Quando a base da pilha é atingida, o esvaziamento termina e os dois índices são incrementados, retomando-se o processo de empilhamento de candidatos. O processo de carregar e esvaziar a pilha prossegue enquanto

houver dados disponíveis nos vetores. Ao final, os vetores são limpos, passando-se à leitura de mais um par de blocos dos arquivos de dados. O algoritmo CCA é representado de forma simplificada na FIG. 4.10 (a). A FIG. 4.10 (b) ilustra a formação dos pares de pulsos (β, γ), candidatos a coincidências. O pulso β no instante $\mathbf{t_i}$ está adiantado em relação ao γ no instante $t_j$, portanto, deve-se buscar o próximo pulso β (i=i+1). O segundo pulso β ($t_{i+1}$) ocorre depois do pulso γ, caso em que se deve buscar o próximo pulso γ (j=j+1).

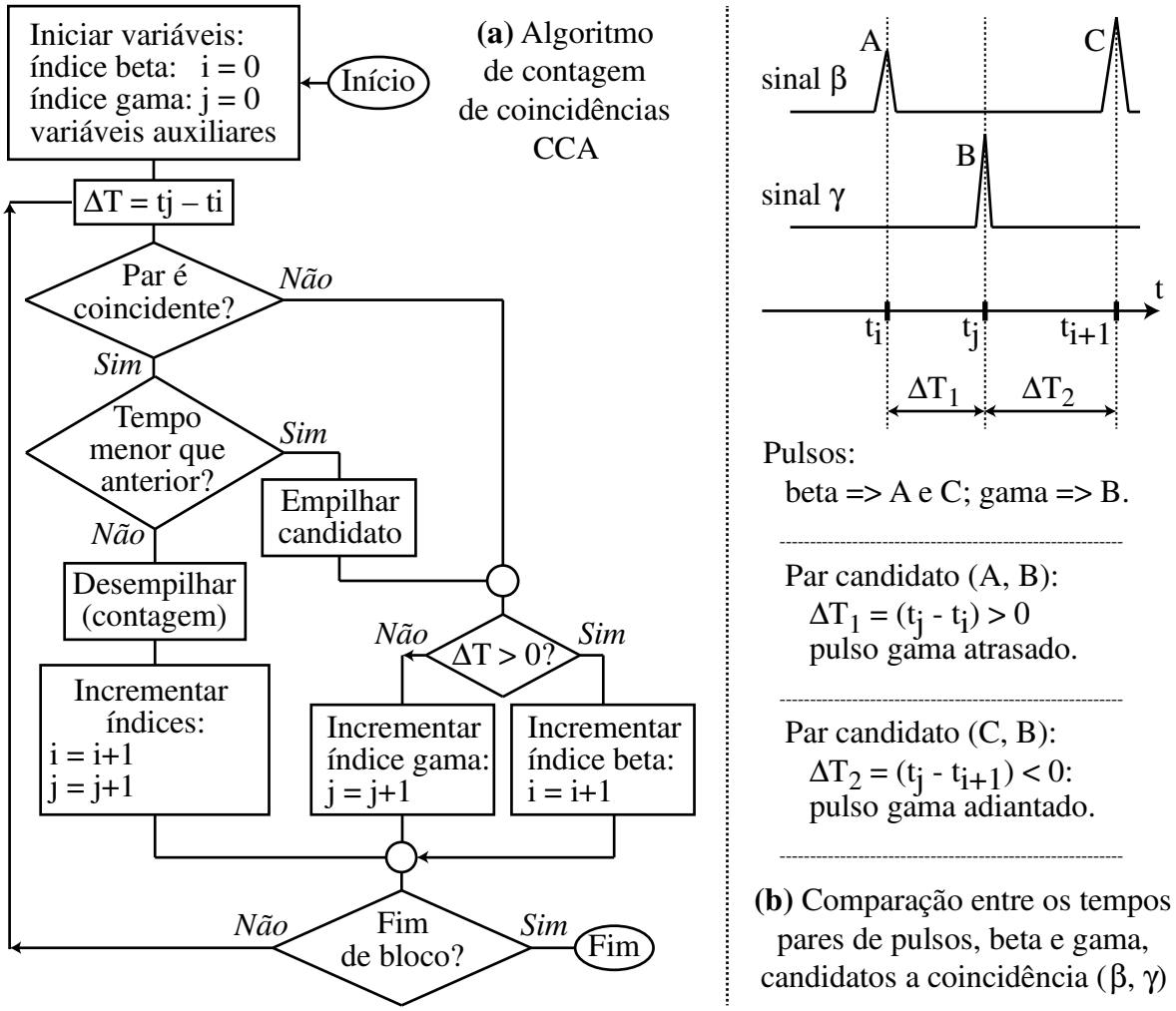



**FIGURA 4.10 – Diagrama para contagem de eventos β e γ coincidentes, CCA, desenvolvido neste trabalho.**

Substituindo-se o algoritmo convencional com dois laços da FIG. 4.9 (incluindo os aperfeiçoamentos citados) pelo método CCA, mais eficiente, o tempo total de análise é reduzido para um terço a um quarto do tempo original.

## 4.3 Programa *Coincidence Analyzing Task* – CAT

O desenvolvimento de *software* é uma função importante do LMN, sendo que diversos programas têm sido desenvolvidos [12, 39-47] como ferramentas de auxílio às medidas. Neste sentido, este trabalho inaugura uma nova fase de produção de *software* no LMN, com a utilização de novos recursos, de modo a favorecer o processo de atualização, reestruturação e integração de programas. Visando uma elaboração de código mais condizente com as normas e técnicas estabelecidas para a boa programação [51-55], foi necessário ampliar o conhecimento nesta área, incluindo o aprendizado de nova linguagem.

O programa CAT (*Coincidence Analyzing Task*) efetua a integração lógica dos métodos descritos na seção 4.2, para viabilizar a utilização das técnicas da metodologia, descritas no capítulo 3, na padronização de radionuclídeos com recursos de análise por *software*. Deste modo, CAT é responsável pela 'fase de análise' descrita na seção 3.2.2. Este programa guarda grande similaridade semântica com o pacote básico de *software* criado inicialmente para SCS, seguindo, entretanto, por caminho independente.

O código foi desenvolvido no paradigma de 'programação orientada a objetos' (*Object-Oriented Programming* – OOP), em ambientes integrados (linguagem C++), como o ***Dev-C++ 5.0 (4.9.9.2)*** [56] (fase inicial) e o ***Qt Creator IDE and tools*** [57], que reúne os seguintes recursos para desenvolvimento multiplataforma: ***Qt SDK***, *Software Development Kit*; ***Qt Creator IDE***, *Integrated Development Environment*; ampla biblioteca de classes e API – *Application Programming Interface*. Desta forma, o código fonte de CAT pode ser compilado para vários ambientes (Windows, LINUX, Mac OS, entre outros).

### 4.3.1 Funcionalidade do Programa CAT

A metodologia proposta consiste em realizar um conjunto de aquisições de dados (SCS), para a amostra de interesse e registro da radiação de fundo ou *background* – BG, seguida da etapa de análise das informações (CAT). Os parâmetros relacionados à medida

e ao processamento dos dados são fornecidos em um arquivo de configuração (v. FIG. 4.11., na próxima página), conforme enumeração:

- Descrição da medida;
- Símbolo e número de massa do radionuclídeo analisado;
- Identificação da amostra medida;
- Data da realização da medida (mês, dia, ano, hora, minuto, segundo);
- Tempo de medida de BG;
- Meia-vida ou constante de decaimento do radionuclídeo (valor, incerteza);
- Massa da amostra (unidade, massa, incerteza);
- Número de canais e tensão nominal do espectro $\beta$;
- Níveis de discriminação $\beta$;
- Número de canais e tensão nominal do espectro $\gamma$;
- Níveis das janelas de discriminação $\gamma$;
- Número de canais do espectro de coincidências;
- Faixa de resolução de tempos de coincidências em segundos

  (normalmente simétrica: $-1.0\times10^{-6}$ a $+1.0\times10^{-6}$);
- Valores do tempo-morto virtual (SDT) em microssegundos;
- Valor de deslocamento dos instantes $\gamma$ (*offset*) em segundos;
- Caminho e nome dos arquivos de dados (SCS) da medida de amostra, $\beta$ e $\gamma$;
- Caminho e nome dos arquivos de dados (SCS) da medida de BG, $\beta$ e $\gamma$;
- Caminho e nome dos arquivos de saída (CAT) espectros $\beta$, $\gamma$ e coincidências;
- Caminho e nome do arquivo de resultados de cálculo (CAT).

```
Análise HPGe - pico pronto 184 (ATIV.); coincid, (us): -1 a +1 em 4096 canais
Ga    67                  /*    radionuclídeo: símbolo e massa atômica    */
#14823                    /*           identificação da amostra           */

1  5  2012  18    43    0  /*                 data da medida               */
1  5  2012  0     0     0  /*               data de referência             */

1200,0                    /*              tempo de medida de BG           */

1  0     3,26130  0,015    /*   1-meia-vida; 0-inc,(%); (valor m-v)/inc,   */
g  0     0,02095  0,1      /* unid, da massa; 0-inc,(%); (m-amostra)/inc,  */

1024        10,0          /*   núm, canais espectro beta; tensão nominal  */
20          1250          /*       região de interesse 1: início/fim      */
50000       50000         /*       sinalizador: fim das entradas ROI      */
1                         /*      número do ROI a utilizar na análise     */

4096        10,0          /*   núm, canais espectro gama; tensão nominal  */
1291        1335          /*       região de interesse 1: início/fim      */
50000       50000         /*       sinalizador: fim das entradas ROI      */
1                         /*      número do ROI a utilizar na análise     */

4096                      /*     núm, Canais espectro de coincidências    */
-1,000E-6   +1,000E-6     /*  faixa de coincidências (tempo de resolução) */

3,0                       /* tempo-morto virtual (SDT, em microssegundos) */
-1.0                      /* finalizador da lista de valores de tempo-morto /

6,7E-7                    /*           atraso dos tempos gama (s)         */

C:/67GaAtiv/67b60501,lvm  /*      nome do arquivo de dados beta (SCS)     */
C:/67GaAtiv/67g60501,lvm  /*      nome do arquivo de dados gama (SCS)     */
C:/67GaAtiv/bgb10601,lvm  /*       nome do arquivo de BG beta (SCS)       */
C:/67GaAtiv/bgg10601,lvm  /*       nome do arquivo de BG gama (SCS)       */

C:/67GaAtiv/specBeta      /*    nome do arquivo de espectro beta (SCS)    */
C:/67GaAtiv/specGama      /*    nome do arquivo de espectro gama (SCS)    */
C:/67GaAtiv/specCoincid   /* nome do arquivo de espectro de coincidências */
C:/67GaAtiv/report        /*    nome do arquivo de resultados (reporte)   */
```

**FIGURA 4.11 – Exemplo de arquivo de configuração de medida e análise utilizado pelo programa CAT.**

O arquivo de entrada ainda contém alguns sinalizadores auxiliares (*flags*), para indicar o tipo de constante fornecida (0: constante de decaimento; 1: meia-vida) e os tipos de incertezas apontadas (0: percentuais; 1: valores absolutos). A unidade das constantes foi fixada em dia$^{-1}$ ou dia, respectivamente. O deslocamento de instantes $\gamma$ (*offset*) é utilizado como uma porta de atraso de pulsos, para posicionar o centroide do espectro de coincidências (distribuição das diferenças de tempos $\beta/\gamma$). Módulos de atraso também podem ser utilizados em sistemas convencionais, antes dos discriminadores (atraso analógico) ou à saída destes (atraso lógico). Os atrasos utilizados para os sistemas de detecção do LMN são da ordem de +0,5 μs, indicando que os pulsos $\beta$ são formados com atraso em relação aos pulsos $\gamma$.

#### 4.3.1.1 Ciclo de Análise e Análise Completa

Ao ser iniciado, CAT efetua a leitura do arquivo de configuração, seguida da leitura dos arquivos de dados. O fluxo de processamento de informações esquematizado na FIG. 4.12, denominado de 'ciclo (ou iteração) de análise', corresponde a um sistema de medida convencional com contadores (v. FIG. 3.2).

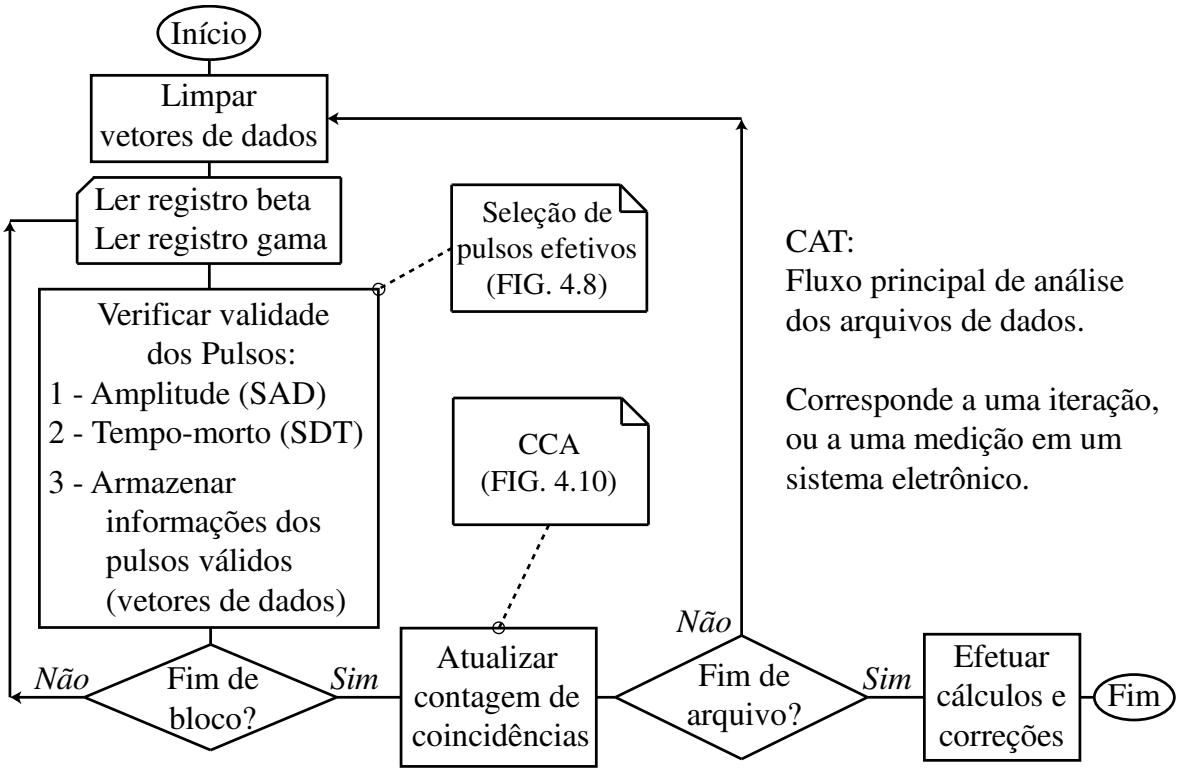



**FIGURA 4.12 – Ciclo de análise de dados do programa CAT, desenvolvido neste trabalho.**

Os intervalos de amplitudes (canais das regiões de interesse, *Region Of Interest* - ROI) são estabelecidos no arquivo de configuração CAT, para cada via, beta e gama, conforme se observa na FIG. 4.11, inserindo-se as seguintes informações:

- número de canais do espectro (resolução) e tensão nominal de fundo de escala;
- lista múltipla de ROI, dada pelo número dos canais, inicial e final;
- número de ROI a considerar na análise, conforme ordem de entrada na lista.

A lista múltipla de regiões de interesse, ordenada a partir do topo (ROI #1), pode conter qualquer número de pares de canais, inicial e final, sendo encerrada pelo par finalizador (50000, 50000). A informação seguinte indica qual região deve ser considerada para análise. Da mesma forma, é possível fornecer uma lista de valores para tempo-morto (em μs), encerrando-se com um valor negativo. Este método de entradas múltiplas permite que o programa CAT seja executado no modo iterativo, onde o ciclo de análise da FIG. 4.12 é repetido para cada combinação definida por um trio de parâmetros ($ROI_\gamma$, SDT, $ROI_\beta$). O modo iterativo é ilustrado na FIG. 4.13 e equivale à realização de várias medidas em um sistema eletrônico. Usualmente, para a obtenção das curvas de extrapolação, apenas $ROI_\beta$ é alterada progressivamente a cada iteração (laço interno: discriminação β), mantendo-se $ROI_\gamma$ (janela γ) e SDT (tempo-morto) inalterados. Para radionuclídeos com níveis metaestáveis, pode-se iterar para mais de um valor de SDT.

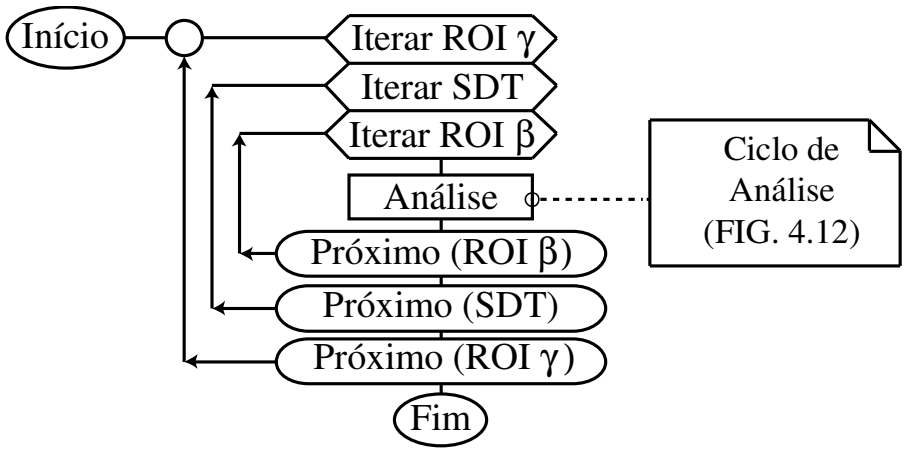



**FIGURA 4.13 – Programa CAT em modo iterativo, com a execução do ciclo de análise para cada combinação de faixas de interesse e de tempo-morto.**

O processamento esquematizado nas FIG. 4.12 e 4.13 pode ser interpretado como a simulação de um sistema de medidas virtual, em que todos os ajustes necessários são fornecidos por um arquivo de configuração (FIG. 4.11). A FIG. 4.14 representa o diagrama em blocos deste sistema virtual equivalente, indicando-se as entradas (arquivos de dados de pulsos, β e γ), os ajustes de medida (indicados na FIG. 4.14 pelo ícone 'ⓐ--➤': níveis de discriminação, β e γ; tempo-morto; atraso para os pulsos γ; resolução de coincidências) e os resultados (saídas: especificadas logo após a FIG. 4.14).

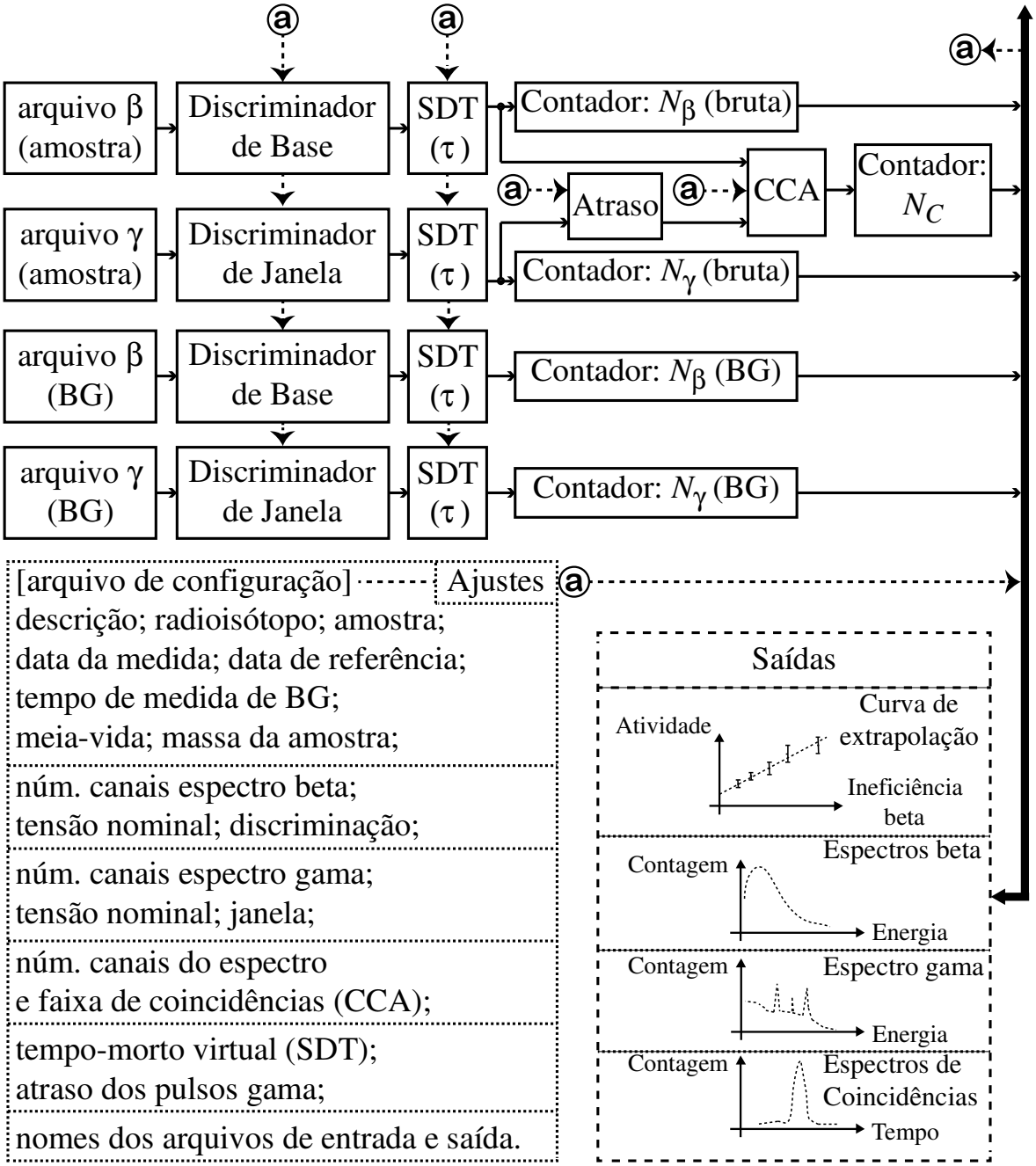



**FIGURA 4.14 – Diagrama em blocos do sistema de medida virtual CAT.**

O programa fornece arquivos de saída com as seguintes informações:

- taxas de pulsos, β, γ e de coincidências (totais; líquidas, com correções);
- fator de ineficiência de contagem β;
- distribuição das energias depositadas para cada via de detecção;
- distribuição de coincidências (intervalos de tempo entre β e γ coincidentes);
- dados (pontos) para a curva de extrapolação: Atividade × Ineficiência β.

#### 4.3.1.2 Processamento Final e Correções

Durante cada ciclo de análise, as contagens e espectros são atualizados (distribuições de energias, β e γ; tempos de eventos coincidentes) e ao final dos arquivos de dados, o ciclo é encerrado, dispondo-se da informação necessária à obtenção da atividade da amostra ($N_\beta$, $N_\gamma$ e $N_C$), para um conjunto de condições (trio de parâmetros: ponto da curva de extrapolação). Os cálculos e correções seguem o formalismo de Cox-Isham [58], amplamente utilizado na metodologia de coincidências, efetuando compensações para tempo-morto e para contagem de coincidências acidentais (ou espúrias). Também são consideradas correções para as taxas de radiação de fundo (β e γ) e para o decaimento da amostra radioativa (durante a medida e para a data adotada como referência da medida).

Smith e colaboradores [59] adaptaram o formalismo de Cox-Isham [58], tornando-o apropriado às aplicações experimentais, com o uso recursos computacionais, incluindo um código em Fortran 77 que executa a aproximação de ordem superior. Esta funcionalidade foi adaptada ao paradigma OOP e disponibilizada pela função membro da classe ***CoincidData*** – ***CoincidData***::***smith***(...). Esta função recebe referências a dois objetos da classe ***PulseData*** (***betaPulses*** e g***ammaPulses***) e a um objeto da classe ***Measurement***, e retorna o valor da atividade corrigida, como objeto constante da classe ***Quantity***. As classes aqui mencionadas são apresentadas a seguir.

### 4.3.2 Classes e Hierarquias

Recursos OOP foram utilizados para compor entidades, tais como: radionuclídeos; amostras radioativas; arranjos de detecção; configurações das medidas; dados de pulsos; resultados de análise. Essa estrutura de classes propicia a criação de bancos de dados, contendo os parâmetros necessários. O arquivo de configuração mostrado na FIG. 4.11 pode, então, ser reduzido a uma referência à biblioteca de medidas (número de identificação do registro da medida, ***#medidaID***, contendo datas, amostra, ajustes, nomes dos arquivos de dados e de resultados). Cada registro do banco de medidas conterá referência a um registro do banco de amostras radioativas (identificação da amostra:

***#amostraID***, contendo a massa e a composição da mesma); a composição, por sua vez, é composta por uma referência ao banco de radionuclídeos (identificação de radionuclídeo: ***#radionuclídeoID***, de onde serão resgatadas as constantes de decaimento).

Desenvolveram-se classes e hierarquias de uso genérico e outras exclusivas ao programa. As primeiras definem objetos disponibilizados em forma de bibliotecas estáticas (*static linking library*), que podem ser utilizadas em qualquer programa compatível com C++, tais como: elementos químicos (Z); isótopos (A) e radioisótopos (constantes de decaimento); fontes e amostras radioativas; classes que descrevem sistemas e seus componentes (elementos); quantidades físicas (valor, incerteza e unidade). No grupo de classes exclusivas, definem-se objetos que encapsulam as informações do processamento de arquivos SCS, tais como: contagens de pulsos e de coincidências; configuração de medida; parâmetros de análise; espectros e resultados. Esta estrutura OOP é descrita sucintamente a seguir, incluindo-se diagramas de classes em padrão UML (*Unified Modeling Language*) [60] (FIG. 4.15 a 4.19), enfatizando os relacionamentos entre classes. Como suporte, o anexo B traz algumas informações sobre a técnica OOP e a simbologia UML para os diagramas de classes e os relacionamentos utilizados no projeto: derivação; associação (agregação e composição).

#### 4.3.2.1 Biblioteca de Hierarquia de Classes *Quantity*

As classes de quantidades (*quantities*) associam uma grandeza física a uma unidade (class ***Unit***) e à sua quantificação (class ***Quantity***). Esta funcionalidade é disponibilizada em biblioteca estática, devendo-se ligar o código cliente ao código objeto "*libCatMath.a*" (definições) e incluir o arquivo "*quantity.h*" (declarações).

A classe ***Unit*** define a unidade da grandeza física, composta pelos membros de visibilidade *protected* herdados pela classe ***Quantity***. Esta relação de herança, ***Quantity é um Unit***, foi adotada para que toda a funcionalidade de unidades esteja diretamente disponível na classe de quantidades e suas derivadas. A unidade é composta por potências de cada uma das sete unidades base do Sistema Internacional (SI): comprimento (metro); massa (quilograma); tempo (segundo); corrente elétrica (Ampère); temperatura termodinâmica (Kelvin); quantidade de substância (mol); intensidade luminosa (candela).

As informações de nome, símbolo e prefixo completam a classe ***Unit***. Exemplificando-se, a unidade de velocidade em centímetros por segundo é definida da seguinte maneira:

- unitVector: vetor de expoentes associados às sete unidades base do SI:
  unitVector = {1, 0, -1, 0, 0, 0, 0}, ou metro$^{1}$, segundo$^{-1}$, demais$^{0}$;
- unit: vetor de sequência de caracteres que define nome e símbolo para a unidade:
  unit = {"centi", "metro por segundo", "cm/s"};
- prefixFactor: fator multiplicativo do prefixo utilizado (centi = $10^{-2}$),
  para conversão à unidade, metro.

A classe base ***Quantity*** encapsula um valor (dado membro: ***value***) e sua incerteza (dado membro: ***absUncertainty***). Além da versão interna de incerteza 'absoluta', a interface pública também disponibiliza o acesso às versões 'relativa' e 'percentual'. Definem-se:

- uma grandeza genérica, valor e incerteza ($\boldsymbol{q = v \pm u}$);
- membros com visibilidade protegida (*protected*),
  que são herdados pelas classes derivadas (especializações);
- interface pública (*public*), com funções virtuais (*virtual*),
  operadores e funções matemáticas (sobrecarga *virtual*),
  incluindo a propagação de incertezas.

As classes derivadas redefinem a interface virtual, obtendo as seguintes especializações:

- ***ExactQuantity*** define grandezas exatas, com incertezas nulas ($\boldsymbol{q = v \pm 0}$);
- ***PoissonQuantity*** define uma contagem de eventos, que pode assumir somente valores positivos ou nulos, com incerteza igual à raiz quadrada do valor:
  ($\boldsymbol{q = p \pm u}$, com $\boldsymbol{v \geq 0}$ e $\boldsymbol{u = \sqrt{p}}$).

A interface pública fornece funções de acesso, para leitura e alteração dos membros, $\boldsymbol{v}$ e $\boldsymbol{u}$. A alteração pode ser independente ou simultânea. Incertezas de quantidades exatas (nulas) ou de Poisson (vinculadas ao valor, $\boldsymbol{p}$) somente podem ser lidas.

Os operadores binários sobrecarregados são fornecidos em versões (funções amigas da classe – *friend* – e membros de classe), permitindo a realização de operações combinadas (bidirecionais) entre *quantities* e tipos primitivos (long int, unsigned long int e double). Sobrecarregam-se os operadores e funções da biblioteca padrão de C++, cmath:

- operador unário (inversão de sinal): -;
- operadores matemáticos binários: +, -, *, /, +=, -=, *=, /=;
- operador de atribuição: =;
- funções exp( ), fabs( ), log( ), log10( ), pow(double), pow(const Quantity &).

Operações e funções são aplicáveis a qualquer objeto da hierarquia *quantities*. Os valores de retorno são ajustados ao tipo do objeto que recebe (*leftvalue*) o resultado. Tipos primitivos (int, double) somente possuem valor, sendo tratados como grandezas exatas. À exceção das funções pow( ) que recebem um expoente (double ou uma referência a um objeto da classe base), as demais funções têm como argumento o próprio objeto que a invoca.

O diagrama UML simplificado para as classes da hierarquia *quantities* é mostrado na FIG. 4.15, indicando-se as instruções Incluir (arquivo de cabeçalho com as declarações) e Ligar – *linking* – (código objeto contendo as definições), também indicadas nas FIG. 4.16 e 4.17, que também se referem a bibliotecas de uso geral.

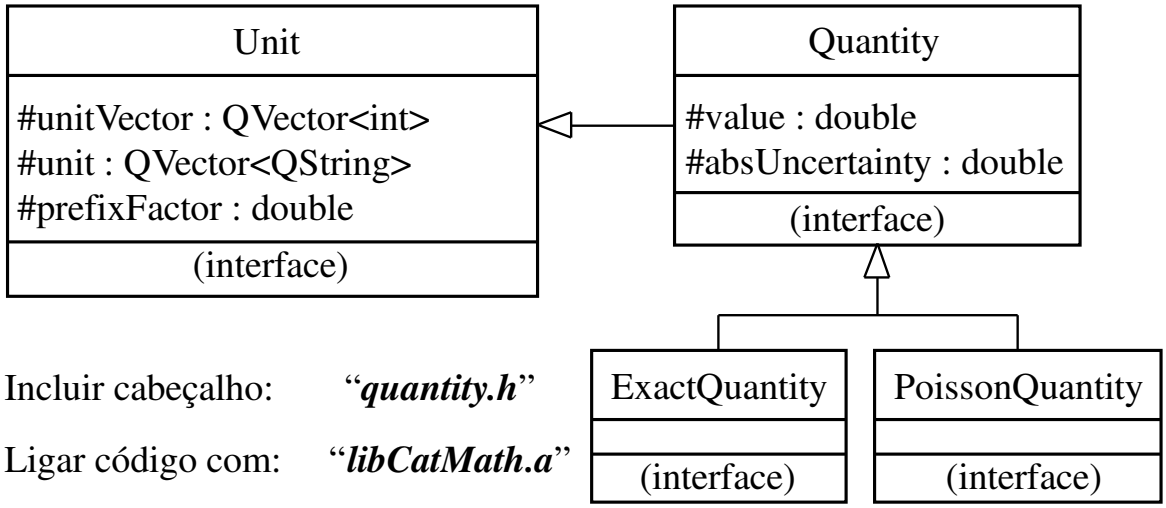



**FIGURA 4.15 – Diagrama de classes da biblioteca de quantidades físicas.**

#### 4.3.2.2 Biblioteca de Descritores e Hierarquia de Elementos e Sistemas

A classe ***Descriptor*** define um conjunto de descritores alfanuméricos (*strings*) para elementos e sistemas, na forma de ponteiros (ou apontador: *pointer*) a objetos da classe ***QString***, armazenados em um vetor, QVector<QString *>. Esta abordagem reduz o número de instâncias QString necessárias. Por exemplo, vários elementos de um sistema, com mesmo nome ou descrição, contêm ponteiros que apontam para um mesmo objeto do tipo ***QString*** (nome ou descrição). A classe ***Descriptor*** disponibiliza, por composição, dois objetos da classe ***QDateTime***, que definem as datas de fabricação e de incorporação a um sistema. Elementos (ou componentes) podem estar isolados ou fazer parte de um sistema pai (apontado pelo ponteiro membro, parent : Element *). Sistemas são elementos que podem conter outros elementos ou sistemas filhos, cujos endereços são armazenados no vetor de filhos, elementVector : QVector < Element *>. As classes contêiner QString e QVector, e a classe QDateTime, aqui mencionadas, são definidas no ambiente Qt [57]. Os descritores da classe ***Descriptor*** são enumerados abaixo. ***Descriptor*** e a hierarquia de elementos e sistemas são esquematizadas pelo diagrama de classes UML da FIG. 4.16.

Descritores da classe ***Descriptor***:

- mainId : int: identificador geral, numérico;
- stringId : QString *: identificador alfanumérico;
- name : QString *: nome do elemento ou sistema;
- description : QString *: descrição;
- manufacturerName : QString *: nome do fabricante;
- elementModel : QString *: número de modelo.

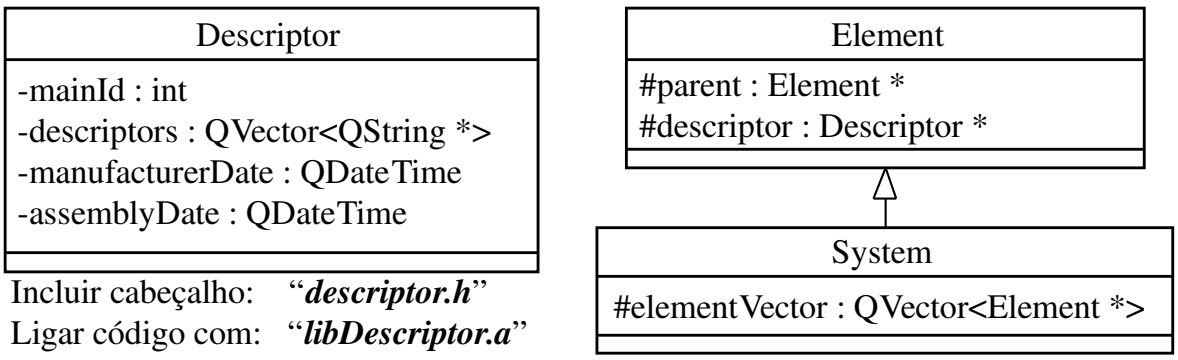



**FIGURA 4.16 – Diagrama de classes da biblioteca de descritores e sistemas.**

#### 4.3.2.3 Biblioteca: dos Elementos Químicos às Amostras Radioativas

Esta biblioteca reúne classes para uso geral, que definem desde o elemento químico até as amostras radioativas, conforme o diagrama de classes da FIG. 4.17.

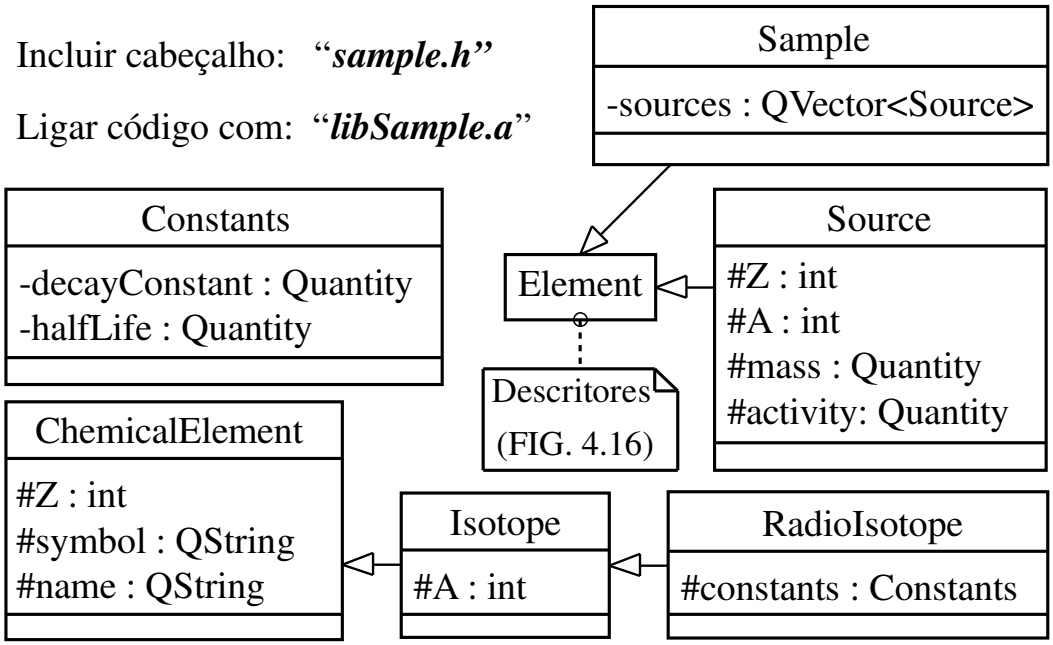



**FIGURA 4.17 – Diagrama de classes da biblioteca de elementos químicos às amostras radioativas.**

A classe ***Constants*** reúne o par de membros: constante de decaimento e meia-vida, inter-relacionados pelas expressões 2.3 ou 2.4. ***ChemicalElement*** define o elemento químico. A classe ***Isotope*** herda da anterior e anexa o número de massa do isótopo. ***RadioIsotope*** herda da anterior e anexa o par de constantes de decaimento. ***Source*** contém os números atômico (Z) e de massa (A), a massa e a atividade da fonte. Por último, ***Sample*** é uma composição de fontes, registradas no vetor sources : QVector<Source>. Cada fonte (*source*) contribui com sua própria parcela de massa e de atividade à composição (amostra).

Ressalta-se que na FIG. 4.17 a classe ***Element*** (elemento de sistema) difere da classe ***ChemicalElement*** (elemento químico). Objetos das classes ***Source*** e ***Sample*** são componentes do sistema de medida e, portanto, objetos do tipo ***Element***, herdando os

recursos descritivos da classe ***Descriptor*** (seção **4.3.2.2**). Assim como as amostras radioativas, outras classes que definem objetos como elementos de um sistema derivam da classe ***Element*** (parte ou componente) ou de ***System*** (todo).

Esta biblioteca de elementos químicos e amostras radioativas ainda inclui a classe ***IsotopesTable***. Trata-se de uma classe *Singleton* (um padrão de projeto: *Design Pattern*) [55], que permite a criação de uma única instância (objeto único: somente uma tabela é necessária, contendo todos os isótopos de interesse). Esta abordagem permite que seja criado um banco de dados de isótopos (estáveis ou radioativos) e, com as informações nele contidas, instanciar a tabela no programa cliente (construir objeto ***IsotopesTable***). Também é possível incluir mecanismos de edição, para que o programa cliente possa alterar a sua tabela e, então, o próprio banco de dados de isótopos (inclusão, exclusão ou atualização de informações). A classe ***IsotopesTable*** é diagramada na FIG. 4.18, junto com as classes auxiliares ***IsotopeX*** e ***Isotopes***.

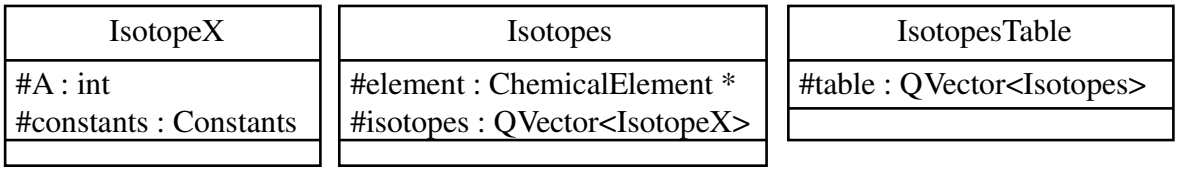



**FIGURA 4.18 – Diagramas das classes auxiliares, *IsotopeX* e *Isotopes*, e da classe *IsotopesTable* da biblioteca de elementos químicos e de amostras radioativas.**

***IsotopeX*** encapsula número de massa e par constantes de decaimento. ***Isotopes*** contém um ponteiro para objetos da classe ***ChemicalElement*** e um vetor com elementos ***IsotopeX*** (lista de isótopos do elemento químico apontado). Finalmente, ***IsotopesTable*** contém um vetor dos isótopos de cada elemento químico (objetos ***Isotopes***, elementos de table : QVector<Isotopes>). O programa CAT utiliza a estrutura de tabela (FIG. 4.18) e objetos das classes ***Constants***, ***ChemicalElement*** e ***Source*** (FIG. 4.17). Os membros Z e A de um objeto ***Source*** são índices para a tabela (***IsotopesTable***): Z aponta para um elemento químico na tabela e A aponta para uma das massas isotópicas desse elemento; se os índices forem válidos, resgatam-se as informações sobre o elemento químico e as constantes do isótopo. Caso Z ou A for inválido, um objeto inválido padrão (*default*) é retornado.

#### 4.3.2.4 Classes Principais do Programa CAT

O programa CAT utiliza uma estrutura própria de classes, conforme o diagrama UML da FIG. 4.19.

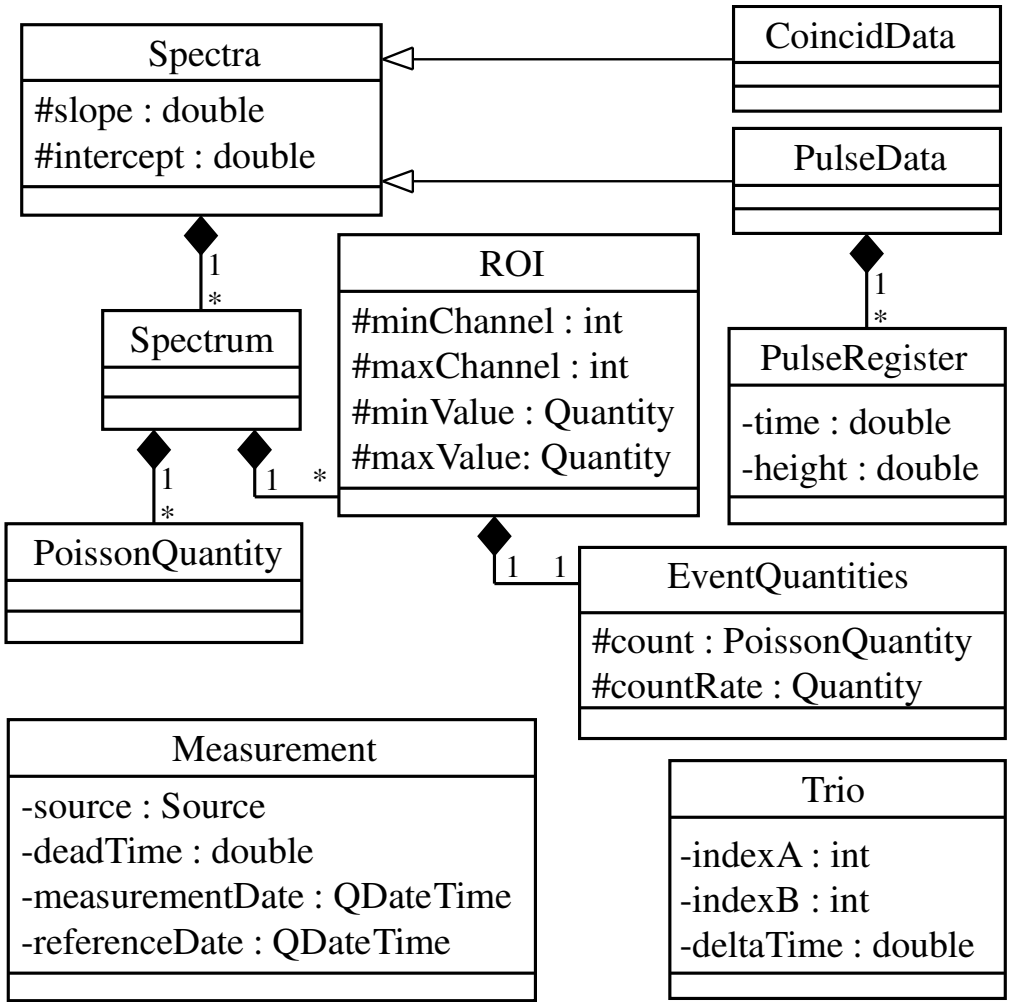



**FIGURA 4.19 – Diagramas das principais classes do programa CAT.**

Instâncias destas classes são criadas para encapsular as informações extraídas dos arquivos de dados (SCS) e aquelas obtidas no processamento, incluindo-se dados auxiliares e temporários, tais como registros de pulsos, contagens e taxas de contagens (brutas, de fundo, líquidas, corrigidas), constantes físicas, massa da amostra, datas e outras variáveis. Como se observa, algumas classes são formadas por associação de objetos de outras classes (agregação ou composição). As classes da FIG. 4.19 podem ser assim resumidas:

- ***Trio*** Ver seção 4.2.4 – CCA: um objeto ***Trio*** guarda informações de um par de pulsos candidato a coincidência; ***indexA*** e ***indexB*** são os índices de cada pulso, dentro dos respectivos vetores; ***deltaTime*** é o tempo entre os pulsos do par; objetos ***Trio*** são armazenados na pilha de candidatos.
- ***ROI*** Eventos nucleares são associados a regiões de interesse (ROI), dentro de um espectro de contagem de pulsos.
- ***EventQuantities*** Cada objeto ***ROI*** possui um par de quantidades associado: contagem total de eventos da região, ***count***; taxa de contagens, ***countRate***.
- ***Spectrum*** Um espectro corresponde a um vetor de objetos ***PoissonQuantity***, ou canais de contagem; cada espectro carrega um vetor de regiões de interesse (***ROI***).
- ***Spectra*** reúne um conjunto de espectros (vetor de objetos ***Spectrum***) relacionados e com as mesmas regiões de interesse, mas cada uma com conteúdos próprios; por exemplo, uma via de pulsos pode ser representada por um espectro de contagens de pulsos da amostra, outro com as contagens de fundo e outro com as contagens líquidas; os membros ***slope*** e ***intercept*** fornecem a calibração do espectro, relacionada aos valores extremos e ao número de canais selecionado.
- ***PulseRegister*** objetos desta classe, registro de pulso, encapsulam as informações de instante e amplitude, lidas dos arquivos de dados (SCS).
- ***PulseData*** dados dos pulsos em cada via, $\beta$ e $\gamma$, são reunidas em objetos desta classe: espectros, por herança da classe ***Spectra***; um vetor de registros de pulsos válidos de um bloco do arquivo de dados (um segundo de aquisição); contagens; taxas e eficiência, entre outras.

- ***CoincidData*** as informações referentes à análise de coincidência (CCA) são agrupadas em um objeto deste tipo: contagens e taxas (totais, líquidas e corrigidas); faixa de resolução de coincidências; a interface pública, além do acesso aos membros privados, provê a funcionalidade de análise (CCA) e das correções de Cox-Isham [58, 59].
- ***Measurement*** uma instância desta classe reúne dados adicionais, como as datas de medida e de referência da atividade, amostra de interesse e tempo-morto da análise; a interface pública provê funções para o gerenciamento da leitura dos arquivos de dados, por registro e por blocos, e para cálculo de decaimento, considerando as constantes associadas ao radionuclídeo e as datas de medida e de referência.

Considera-se que esta explanação fornece uma visão geral da estrutura OOP criada, suficiente à compreensão da funcionalidade de gerenciamento e processamento de informações extraídas dos arquivos de dados, e que uma descrição mais detalhada fugiria ao escopo deste trabalho. A documentação é atualmente fornecida 'em código', de forma suficientemente abrangente. Estas estruturas podem ser aperfeiçoadas e ampliadas, conforme a necessidade, provendo-se documentação adequada, incluindo-se o manual de usuário.

## 4.4 Outros Métodos de *Software* Utilizados na Análise

Conforme apresentado na seção 4.3, a versão atual de CAT disponibiliza a funcionalidade e as técnicas essenciais à metodologia de coincidências, fornecendo resultados que devem ser processados por outros aplicativos, de forma a completar o processo metodológico. Esta seção apresenta as principais tarefas realizadas com recursos adicionais, entre as quais se incluem análises estatísticas e regressão de dados, incluindo-se correlações e covariâncias, obtenção de gráficos e tabelas e simulações pelo método de Monte Carlo.

Entretanto, é possível incorporar novos recursos ao programa de análise e integrar as tarefas externas aqui mencionadas, pois sua estrutura de classes facilita o processo de atualização de *software*. Desta forma, pode-se aumentar o grau de autossuficiência deste programa.

### 4.4.1 Simulação por Monte Carlo

O método básico de discriminação de amplitudes β por *software*, SAD (seção 4.2.1), para obtenção da curva de extrapolação, exclui elétrons com o aumento progressivo, a cada iteração, do nível mínimo de amplitude computável. Assim, é possível rejeitar os elétrons de conversão, principalmente em medidas de radionuclídeos que possuem coeficientes de conversão interna significativos. A absorção parcial da energia desses elétrons também contribui para essa rejeição indevida, pois os pulsos de detecção assim produzidos podem ser registrados na região de baixas energias, mesclando-se à região espectral das partículas responsáveis por coincidências (β; *Auger*). Nestes casos, a exemplo do $^{67}$Ga, torna-se difícil utilizar o método de extrapolação, pois a expressão 3.6 (ou 3.7) torna-se inválida, em razão do parâmetro $\boldsymbol{k}$ deixar de ser constante, reduzindo a inclinação da curva de extrapolação. Por esta razão, utilizando-se o método SAD (ou a discriminação por monocanal em um sistema convencional), o valor da atividade extrapolada tende a ser maior do que a atividade real esperada, $\boldsymbol{N_0}$. Para solucionar problemas desse tipo, o LMN desenvolveu o programa ESQUEMA [46] de simulação por Monte Carlo, recentemente aperfeiçoado [47], para a obtenção de previsões teóricas das curvas de extrapolação. Parte da simulação é realizada com o programa MCNP5 [48], com a modelagem das geometrias de detecção e de amostras, para a obtenção de espectros de energias depositadas, utilizados como entradas do programa ESQUEMA, reproduzindo as demais condições experimentais (como o método de discriminação empregado – SAD).

A curva teórica é proporcional à sua equivalente experimental, sendo possível realizar a normalização, obtendo-se o melhor fator de proporcionalidade entre as duas curvas, por ajuste de mínimos quadrados. O número de histórias da simulação de Monte Carlo é utilizado para representar o valor teórico da atividade extrapolada, bastando aplicar o fator de proporcionalidade para determinar a atividade procurada da amostra radioativa.

A função de mérito do parâmetro $N_0$ é dada por:

$$\mathcal{Q} = \left(\vec{y}_{exp} - N_0\,\vec{y}_{MC}\right)^T V_y^{-1}\left(\vec{y}_{exp} - N_0\,\vec{y}_{MC}\right) \tag{4.1}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $\vec{y}_{exp}$ | é o vetor experimental de $N_\beta N_\gamma / N_c$; |
| $\vec{y}_{MC}$ | é o vetor de $N_\beta N_\gamma / N_c$ calculado por Monte Carlo para atividade unitária; |
| $N_0$ | atividade da amostra radioativa; |
| $V_y$ | é a matriz de covariância total, incluindo as variâncias experimentais e calculadas; |
| $T$ | indica transposição de matriz. |

### 4.4.2 Métodos de Ajuste de Dados Experimentais

Apresenta-se breve descrição dos métodos de ajuste de curvas aos dados experimentais obtidos neste trabalho. Detalhes específicos, como tabelas contendo os principais fatores que contribuem para as incertezas das medidas, são fornecidos nas respectivas descrições metodológicas (seção 4.5). As propagações de incertezas consideram intervalo de confiança de 68,3% (u=1: mais ou menos um desvio padrão).

Os ajustes foram realizados com o programa LINFIT [43], que recebe um arquivo de entrada com os dados experimentais, a ordem do polinômio de ajuste (grau *n*), as contribuições estimadas de incerteza de cada grandeza utilizada no cálculo e os respectivos fatores de correlação. LINFIT gera um arquivo de saída do ajuste, contendo:

- parâmetros ajustados para o polinômio de grau *n* e respectivas incertezas;
- valores interpolados com a função obtida (se requisitados);
- Qui-Quadrado reduzido;
- matriz de correlação.

Valores de Qui-Quadrado reduzido próximos da unidade indicam que as incertezas e respectivas correlações foram estimadas satisfatoriamente. Valores abaixo ou acima da unidade indicam que as incertezas foram, respectivamente, super ou subestimadas. Neste último caso, usualmente, procede-se à reavaliação dos fatores de correlação e, se necessário, à normalização de incertezas, multiplicando-se cada estimativa pela raiz quadrada do Qui-Quadrado reduzido. Com novo ajuste, obtém-se a grandeza desejada e uma estimativa mais realista para a incerteza.

Para cada conjunto de dados do $^{152}$Eu (pares de análises: v. seção 4.5.1) foram efetuados ajustes à expressão 3.10 de dois parâmetros, utilizando-se o MS-Excel. Os valores de atividade obtidos em cada conjunto foram agrupados para obtenção do valor médio, ajustado com o programa LINFIT.

Para ajustar as funções de decaimento exponencial dos eventos atrasados do $^{67}$Ga (seção 4.5.2.1), utilizou-se o programa Microcal Origin 4.00 [49]. O valor médio final, ponderado pelas incertezas, foi obtido pelo método de ajuste linear (LINFIT).

A curva de eficiência em função da energia para o detector REGe foi obtida com o programa LOGFIT [42], para polinômio de quinto grau, em escala log-log (seção 4.5.2.3).

## 4.5 Aplicação da Metodologia nas Padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga

Os métodos e procedimentos base apresentados devem ser combinados para produzir metodologias específicas a cada radionuclídeo, como as apresentadas nesta seção, desenvolvidas para a padronização do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga. Para esta tarefa, foi suficiente obter um conjunto de dados SCS para cada radionuclídeo mencionado. O processamento apropriado de cada conjunto de dados foi obtido com abordagens específicas, envolvendo um processo de ajuste ou refinamento, visando-se coerência teórica e consistência de resultados (v. capítulo 5). A seção 5.2.2, por exemplo, apresenta o refinamento metodológico realizado para viabilizar a normalização das curvas de extrapolação do $^{67}$Ga.

### 4.5.1 Padronização do $^{152}$Eu

Em um trabalho anterior do LMN [35], realizou-se a padronização do $^{152}$Eu, como parte integrante de uma comparação internacional organizada pelo BIPM, que forneceu aos laboratórios participantes uma solução matriz, na forma de 26 μg de $EuCl_3$/ml HCl 1M. O LMN recebeu 0,891321 g do material, preparando quinze amostras para a medida. Uma dessas amostras, com massa de 0,011534 g (±0,2%), foi disponibilizada para este trabalho, viabilizando o desenvolvimento da metodologia de ajuste biparamétrico, apresentada na seção 3.1.2.2. Deste modo, confrontando-se os resultados obtidos com SCS/CAT com os obtidos por laboratórios reconhecidos internacionalmente, participantes da comparação referenciada, foi possível avaliar o desempenho do novo sistema de medida e análise de coincidências, comprovando a sua eficácia (validação).

A medida da amostra foi realizada às 12h00min de 29/05/2012 com aquisição de dados de 20000 s, para uma adequada estatística de contagem. A contagem de fundo (BG) foi obtida em aquisição de 5000 s. Obtiveram-se, simultaneamente, dados γ com os detectores NaI(Tl) e HPGe, do arranjo de detecção #1, optando-se por utilizar dados de alta resolução em energia (HPGe), para separação apropriada dos picos de cada transição.

Efetuaram-se seis análises de coincidências 4πβ-γ com o programa CAT, com resolução de coincidências de ±1 μs e tempo-morto de 3 μs. A mesma data de referência anterior foi adotada (09h00min de 01/07/1999), para possibilitar a comparação direta com resultados obtidos por outros laboratórios. Cada análise foi centrada em uma linha γ, conforme TAB. 4.1 (ramos $\beta^-$: energias de 344,28, 411,12 e 778,91 keV; ramos de captura eletrônica – EC: energias de 964,08, 1112,08 e 1408,01 keV). As seis análises foram reunidas em nove pares, enumerados, entre colchetes, na última coluna da TAB. 4.1, combinando-se resultados provenientes de ramos de desintegração distintos, $\beta^-$ e EC. Para cada par, efetuou-se o ajuste dos parâmetros da expressão 3.10, obtendo-se a atividade da amostra (parâmetro $p_1$). A TAB. 4.1 inclui informações de probabilidades e coeficientes totais de conversão interna ($\alpha_T$) [61]. A notação de incertezas entre parênteses indica que os algarismos menos significativos são afetados.

**TABELA 4.1 – Ramos de decaimento, energias γ utilizadas e pares de análise.**

| | Ramo de decaimento de origem | | Energia (keV) | Probabilidade (%) | $\alpha_T$ | Par para análise biparamétrica |
|---|---|---|---|---|---|---|
| * | $\beta^-$ | ($\gamma_{1,0}$) | 344,28 | 26,59 | 0,0399 (12) | [ 344 e 964 ]<br>[ 344 e 1112 ]<br>[ 344 e 1408 ] |
| | $\beta^-$ | ($\gamma_{3,1}$) | 411,12 | 2,238 | 0,0239 (7) | [ 411 e 964 ]<br>[ 411 e 1112 ]<br>[ 411 e 1408 ] |
| * | $\beta^-$ | ($\gamma_{7,1}$) | 778,91 | 12,97 | 0,00190 (6) | [ 779 e 964 ]<br>[ 779 e 1112 ]<br>[ 779 e 1408 ] |
| * | EC | ($\gamma_{9,1}$) | 964,08 | 14,5 | 0,00270 (8) | |
| | EC | ($\gamma_{10,1}$) | 1112,08 | 13,41 | 0,00200 (6) | |
| * | EC | ($\gamma_{13,1}$) | 1408,01 | 20,85 | 0,000600 (18) | |

A partir dos nove valores de atividade obtidos de cada ajuste linear biparamétrico (dados combinados, $\beta^-$ e EC, conforme última coluna da TAB. 4.1), determinou-se o valor final da atividade da amostra por média ponderada, conforme descrito na seção 4.4.2. A incerteza foi estimada por propagação das parcelas provenientes da massa da amostra, constantes e correções de decaimento, estatística de contagens e dos parâmetros ajustados. Também foram efetuadas simulações de dados de coincidências pelo método de Monte Carlo, considerando-se as quatro transições γ de maior probabilidade, duas de cada modalidade de decaimento, destacadas por asterisco, na primeira coluna da TAB. 4.1: 344($\beta^-$); 779($\beta^-$); 964(EC); 1408(EC). Desta simulação, obtiveram-se as atividades para as quatro combinações, ou pares $\beta^-$/EC, comparando-se aos valores determinados experimentalmente. Estes resultados e informações relevantes estão reunidos na seção 5.1, incluindo-se valores obtidos pelos laboratórios participantes da intercomparação citada.

O esquema de decaimento do $^{152}$Eu é bastante complexo [61], optando-se por apresentar um diagrama de decaimento simplificado, à FIG. 4.20, com destaque às linhas de emissão utilizadas nos pares de análises biparamétricas (setas pontilhadas). Podem-se observar os ramos de decaimento por $\beta^-$, ao $^{152}$Gd (à esquerda da vertical tracejada), e por $\beta^+$ e captura eletrônica (**ε**), ao $^{152}$Sm (à direita da vertical tracejada). Destaca-se que a probabilidade total de decaimento ao $^{152}$Sm é de aproximadamente 72%, sendo que o decaimento por $\beta^+$, da ordem de apenas 0, 03%, foi desconsiderado.

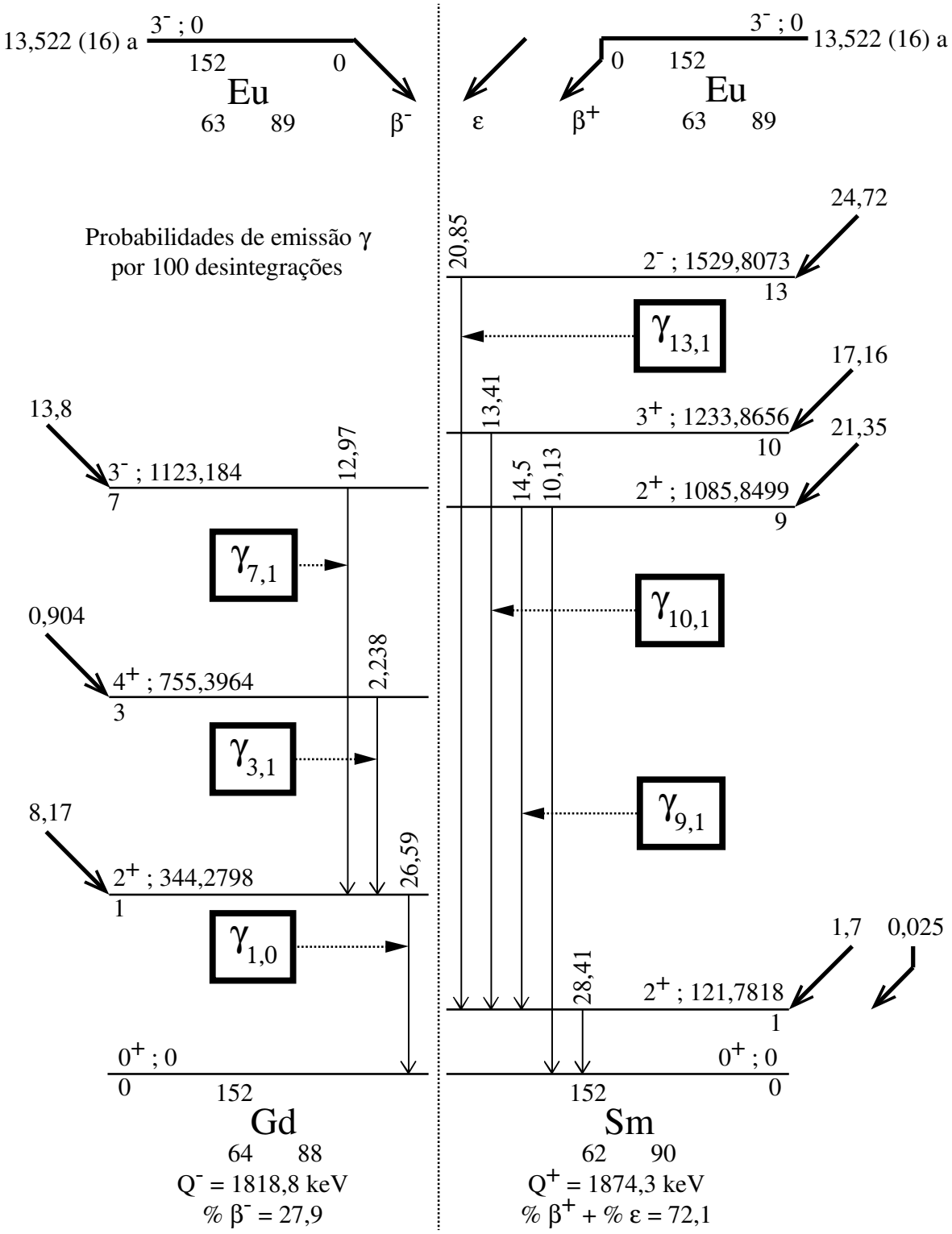



**FIGURA 4.20 – Esquema de decaimento simplificado do $^{152}$Eu [61], com destaque às emissões γ utilizadas na análise biparamétrica.**

### 4.5.2 Padronização do $^{67}$Ga

O $^{67}$Ga decai exclusivamente por captura eletrônica e apresenta uma transição metaestável de 93 keV, com $T_{1/2}$ = 9,1 μs, e com intensidade significativa de conversão interna ($\alpha \approx 0{,}85$).

Cinco amostras de $^{67}$Ga foram preparadas para o desenvolvimento da metodologia de análise por *software*, para a padronização de radionuclídeos com níveis metaestáveis. A TAB. 4.2 reúne informações sobre as amostras e sobre as aquisições de dados realizadas.

**TABELA 4.2 – Identificação de amostras de $^{67}$Ga e dados de medida (SCS).**

| Amostra (#ID) | massa (g) (±0,10%) | Tempo de medida (s) Amostra | BG | Data e Hora Medida | Referência |
|---|---|---|---|---|---|
| #14821 | 0,027985 | 6000 | 1200 | 05/01/2012 - 13:56:00 | |
| #14822 | 0,028435 | 8000 | 1200 | 06/01/2012 - 08:30:00 | 05/01/2012 |
| #14823 | 0,020950 | 12000 | 1200 | 05/01/2012 - 18:43:00 | 0:00:00 |
| #14824 | 0,041314 | 6000 | 1200 | 05/01/2012 - 13:56:00 | |
| #14826 | 0,047848 | 6000 | 1200 | 06/01/2012 - 14:42:00 | |

Para cada amostra, obtiveram-se conjuntos de arquivos de dados, incluindo medidas de radiação de fundo ou BG. As aquisições foram realizadas utilizando-se o arranjo de detecção #1, FIG. 4.3 (a), para digitalização simultânea dos sinais de suas três vias – 4πβ, NaI(γ) e HPGe(γ) –, conectados às entradas #0, #1 e #2, disponíveis em SCS.

Com a configuração descrita, é possível efetuar análises utilizando as informações de pulsos β, obtidas do contador proporcional (4πβ), combinadas aos dados de pulsos γ provenientes dos detectores NaI ou HPGe. A utilização simultânea de dois detectores γ distintos representa outra contribuição inovadora deste trabalho, disponibilizando, conforme a necessidade, dois modos de análise de coincidências, em alta resolução de energia γ (4πβ/HPGe), ou com maior eficiência de contagem γ (4πβ/NaI).

O processo de desenvolvimento e de análise utilizou diferentes combinações entre os arquivos de dados do $^{67}$Ga, conforme mencionado acima, englobando três etapas para a obtenção das seguintes grandezas (combinações de dados entre parênteses):

- Seção 5.2.1 – meia-vida do nível metaestável de 93 keV

  (combinações: $4\pi\beta/4\pi\beta$; $4\pi\beta$/HPGe; $4\pi\beta$/NaI);

- Seção 5.2.2 – atividade de cada uma das cinco amostras e a atividade específica da solução matriz, como o valor médio ponderado entre as cinco amostras (combinação $4\pi\beta$/HPGe);

- Seção 5.2.3 – probabilidade de emissão $\gamma$ para nove transições

  (combinação $4\pi\beta$/HPGe e dados obtidos com espectrômetro REGe).

A obtenção da meia-vida do nível metaestável foi centrada em eventos $\gamma$-atrasados (93 keV). Observa-se a inclusão de uma terceira combinação de dados, utilizando apenas os arquivos de pulsos $\beta$, para análise da distribuição de tempos entre eventos prontos e atrasados do detector $4\pi\beta$: elétrons *Auger*, prontos, com origem em eventos de captura e elétrons de conversão interna, atrasados, provenientes da transição metaestável, cuja intensidade decai exponencialmente com o tempo, conforme expressão 2.1. Para a determinação das probabilidades de emissão $\gamma$ por decaimento ainda se utilizam dados de medidas com o espectrômetro $\gamma$ REGe (seção 5.2.3).

Conforme esquema de decaimento na FIG. 4.21 [62], o $^{67}$Ga decai 100% por captura eletrônica, a níveis (excitados e fundamental) do $^{67}$Zn, com meia-vida de 3,2613 (5) dias. O nível de transição $\gamma$ metaestável (93 keV) tem meia-vida de 9,0 $\mu$s, com coeficiente de conversão interna significativo: 0,8540 (120). As transições $\gamma$ utilizadas para as análises deste trabalho estão destacadas na FIG. 4.21 por setas pontilhadas. O retângulo pontilhado destaca as duas transições utilizadas nas análises para determinação da meia-vida metaestável ($\gamma_{1,0}$) e da atividade ($\gamma_{2,0}$), com as respectivas energias, as probabilidades de emissão $\gamma$ por desintegração e os coeficientes totais de conversão interna ($\alpha_T$).

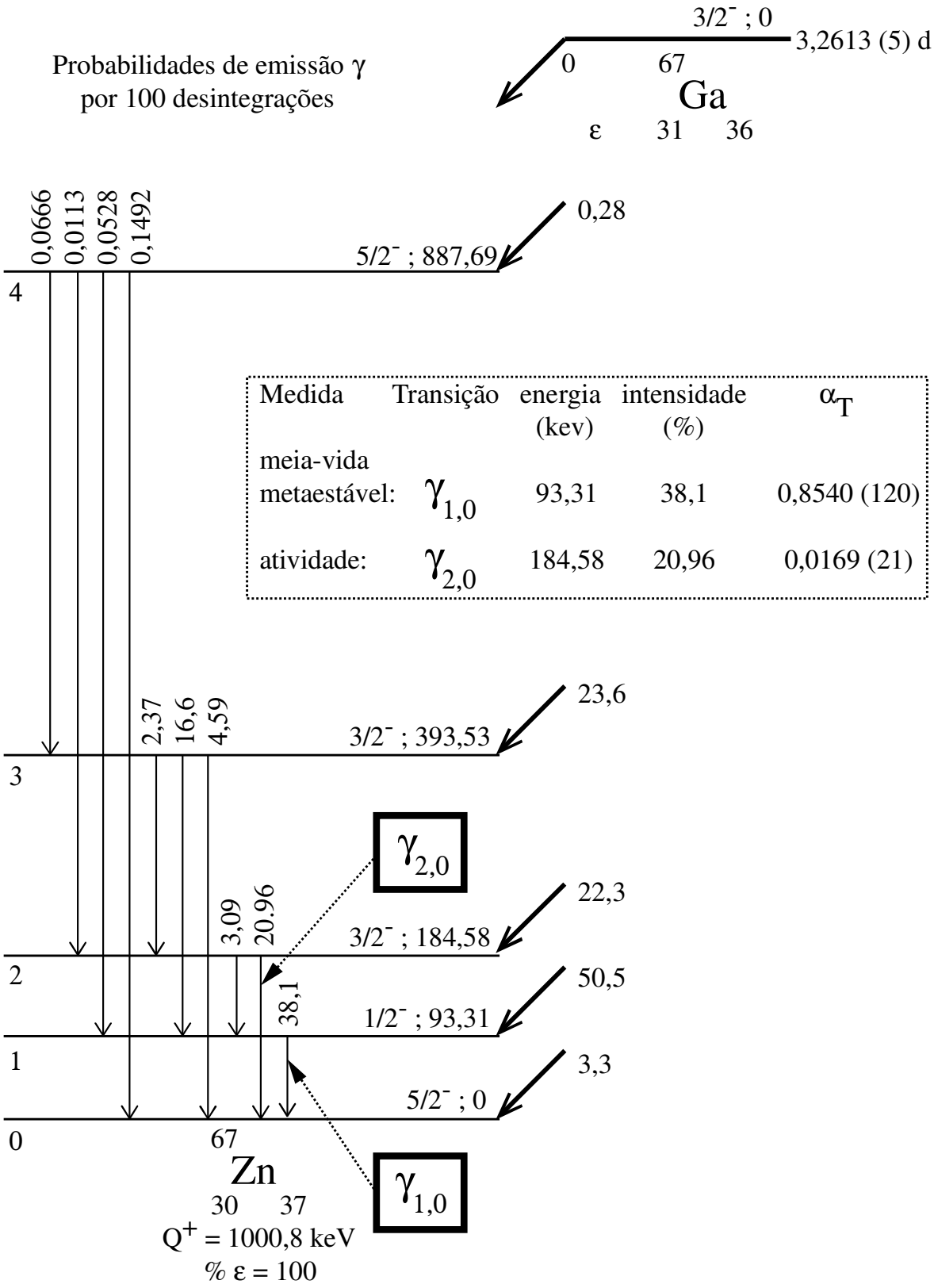



**FIGURA 4.21 – Esquema de decaimento do $^{67}$Ga [62], com destaque às emissões γ utilizadas nas análises.**

#### 4.5.2.1 Meia-Vida do Nível Metaestável de 93 keV

Aplicando-se a metodologia de coincidência por *software*, torna-se possível determinar o número exato de coincidências reais ao longo do tempo, acompanhando-se o número de pulsos $\gamma$ associados a pulsos $\beta$, para a transição metaestável. Como as contagens $\gamma$ correlacionadas no tempo seguem a distribuição de Poisson, torna-se possível determinar, além da atividade, a meia-vida do estado por meio de ajuste por mínimos quadrados da distribuição coincidências de eventos atrasados.

A obtenção da atividade fundamenta-se nas coincidências entre dois eventos prontos (simultâneos à desintegração), como um $\beta$ seguido imediatamente de um $\gamma$. Neste caso, o tempo de resolução típico é da ordem de $\pm 3$ μs, suficiente para abranger as flutuações de tempo de formação dos pulsos dos detectores $\beta$ e $\gamma$. No presente caso, o $\gamma$-pronto é substituído por um evento originado na transição metaestável, estendendo-se o tempo de resolução de coincidências de forma a abranger, no mínimo, dez meias-vidas do nível. Para o $^{67}$Ga, o intervalo mínimo deve ser da ordem de $\pm 90$ μs, para abranger a maior parte do decaimento metaestável (93 keV). Para esta medida adotou-se uma faixa de resolução de coincidências de $\pm 200$ μs.

As análises de distribuições de tempos foram realizadas para as três combinações de dados mencionadas na seção anterior, que concernem aos seguintes pares de eventos:

- elétrons prontos (*Auger* – $4\pi\beta$) e gamas atrasados do detector HPGe;
- elétrons prontos (*Auger* – $4\pi\beta$) e gamas atrasados do detector NaI(Tl);
- elétrons prontos (*Auger* – $4\pi\beta$) e elétrons atrasados (Conversão interna – $4\pi\beta$).

A FIG. 4.22 ilustra dois espectros de coincidências $4\pi\beta$/NaI-$\gamma$, um com foco no $\gamma$-pronto de 184 keV (a) e outro focalizado no $\gamma$-atrasado de 93 keV (b) e (c).

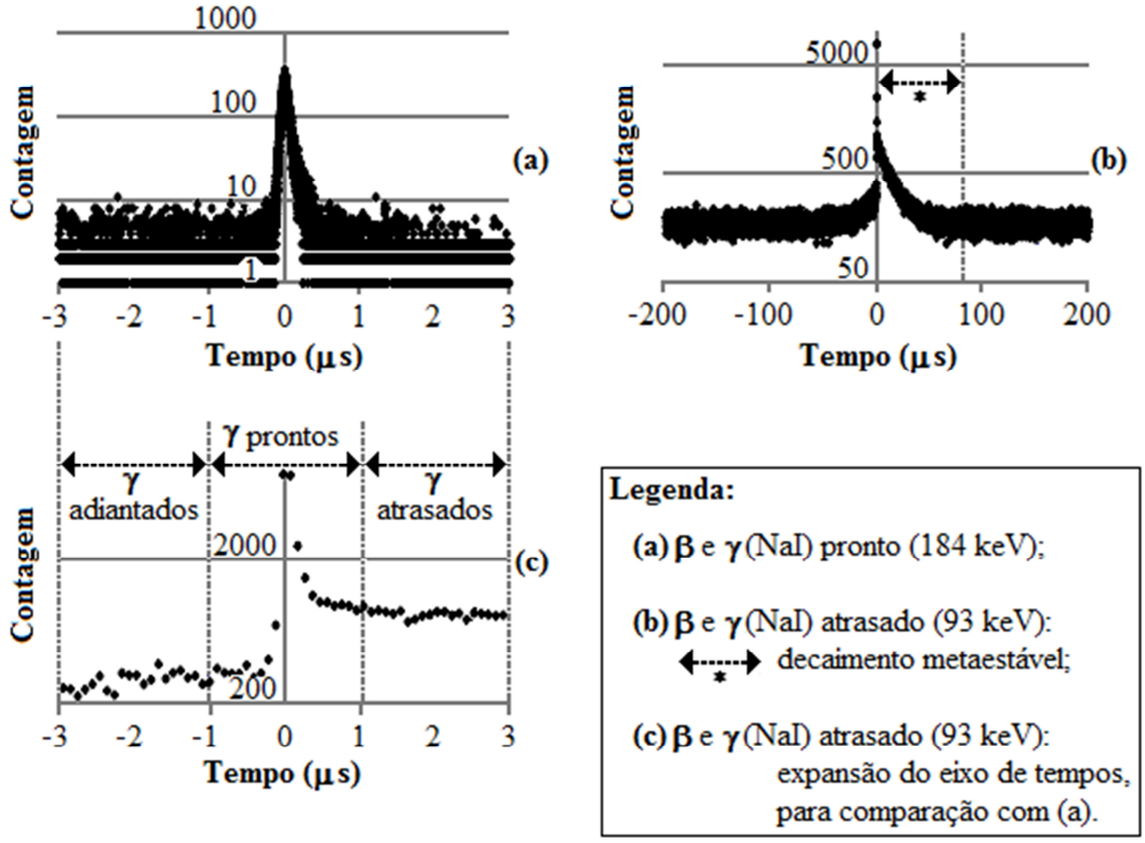



**FIGURA 4.22 – Distribuições de tempos de coincidências para o $^{67}$Ga, considerando os eventos prontos de 184 keV e os atrasados de 93 keV.**

As coincidências prontas (γ de 184 keV) na FIG. 4.22 (a) abrangem a faixa de -3 a 3 µs. A FIG. 4.22 (b) apresenta faixa de -200 a 200 µs, incluindo coincidências prontas (pico) e atrasadas do γ de 93 keV, evidenciando-se a região do decaimento metaestável. Tempos negativos resultam de pulsos γ-adiantados, enquanto os positivos provêm de pulsos γ-atrasados. Pulsos γ-adiantados ocorrem em razão de flutuações nos tempos de detecção dos pulsos e de coincidências espúrias. A FIG. 4.22 (c) detalha a região de pico da FIG. 4.22 (b), com a mesma escala de tempos utilizada na FIG. 4.22 (a), possibilitando a comparação direta entre ambas. As regiões negativas nas FIG. 4.22 (a) e (c) apresentam comportamento similar (pico e cauda). As regiões positivas nas FIG. 4.22 (a) e (c) são similares apenas na região de pico (eventos prontos), de 0 a ~0,5 µs, e para tempos maiores que ~80 µs (coincidências espúrias). A região de tempos intermediários, entre 0,5 e 80 µs, é influenciada pelo decaimento do nível metaestável.

O método utilizado para obtenção da meia-vida do nível 93 keV consiste em ajustar uma função de decaimento exponencial à região caudal direita da FIG. 4.22 (b), para cada uma das cinco amostras de $^{67}$Ga e para cada uma das três combinações de dados mencionadas, totalizando quinze ajustes. A região próxima ao pico é desprezada, para minimizar a influência das coincidências prontas. A função utilizada para ajuste corresponde à exponencial de decaimento, expressão 2.1, superposta a uma constante, correspondente às coincidências acidentais (ou espúrias), para tempo tendendo a infinito:

$$N_c(t) = N_m\, e^{-\lambda t} + N_a \tag{4.2}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $N_c(t)$ | contagem (intensidade) de coincidências de tempo $t$; |
| $N_m$ | idem, para $t = 0$ (intervalo mais provável: contagem máxima); |
| $\lambda$ | constante de decaimento do nível metaestável; |
| $N_a$ | contagem constante de coincidências acidentais ($t \rightarrow \infty$). |

As exponenciais experimentais do decaimento metaestável foram obtidas das regiões de pulsos γ-atrasados, com histogramas de 2048 classes (*bins* ou canais), de 0 a 200 μs (resolução aproximada de 0,098 μs/canal). Uma classe ou canal $c_i$ (ou $t_i$, em μs) apresenta a contagem dos pares de pulsos coincidentes, com intervalos de tempo (μs) na faixa de $t_i = c_i \times 0{,}098$ a $t_{i+1} = c_{i+1} \times 0{,}098$.

Alguns fatores que podem afetar a escala de tempo das medidas foram avaliados a partir de especificações técnicas ou de experimentação auxiliar, a saber:

- Frequência de amostragem de PCI-6132, que define a escala de tempo;
- Efeito de decaimento de contagens no intervalo de tempo de um canal;
- Flutuação nos tempos de formação dos pulsos de detecção;
- Tempo-morto da medida.

Os resultados destes ensaios e medidas são apresentados na seção 5.2.1.

#### 4.5.2.2 Atividade Normalizada por Monte Carlo

A expressão 3.11 da seção 3.1.2.3 foi obtida no LMN por Attie et al. (1998), para a padronização de radionuclídeos que apresentam transições metaestáveis. Observa-se que quando o tempo-morto de medida tende a infinito a expressão 3.11 resulta equivalente às expressões 3.6 e 3.7 (caso simples de extrapolação da eficiência $\beta$). Portanto, além de variar parâmetros relacionados à eficiência de contagem $\beta$, o tempo-morto das medidas deve assumir valor, no mínimo, dez vezes maior do que a meia-vida metaestável mais longa. Na época, a padronização do $^{67}$Ga foi realizada por obtenção de diversas famílias de curvas de extrapolação de eficiência $\beta$, parametrizadas por tempo-morto, em um processo que demandou vários meses. A variação da eficiência $\beta$ foi obtida pela inserção gradativa de atenuadores de elétrons, em cada amostra, e o tempo-morto de medida foi ajustado entre 3 e 48 $\mu$s, por meio de módulos eletrônicos. Então, a atividade foi obtida por extrapolação dupla, de eficiência $\beta$ (a 100%) e de tempo-morto (a infinito).

A padronização de $^{67}$Ga realizada neste trabalho estabeleceu uma metodologia de análise por *software*, utilizando abordagens próprias para discriminação $\beta$ e simulação de tempo-morto que permitem executar todo o processo em alguns dias, ou mesmo horas. O tempo para aquisição de dados é determinado de acordo com a estatística de contagem desejada (neste trabalho, os tempo variam 6000 a 12000 s, conforme a atividade das amostras). A análise dos dados inclui a elaboração de planilhas, ajustes matemáticos e simulação de Monte Carlo para normalização das curvas de extrapolação.

Para esta padronização, utilizou-se o arranjo de detecção #1, obtendo-se dados $\gamma$ em alta resolução em energia, da via HPGe. A simulação de Monte Carlo foi realizada para normalização das curvas de extrapolação (v. seção 4.4.1), incluindo a modelagem do par de detectores, $4\pi\beta$/HPGe, do arranjo #1. A versão atual do programa ESQUEMA desconsidera as correções referentes a transições metaestáveis, optando-se pela simulação de tempo-morto tendendo a infinito, de modo a minimizar a contribuição de eventos tardios. A mesma estratégia foi adotada na obtenção de dados experimentais.

As análises dos dados foram centradas em coincidências entre pulsos dos detectores $4\pi\beta$ e HPGe, devidamente discriminados. A transição $\gamma$ de 184,58 keV foi adotada como região de interesse em razão de sua maior intensidade (~21% [62]). O tempo-morto (SDT) foi fixado em 99 μs, como boa aproximação para infinito, e a faixa de resolução de coincidências (CCA) foi configurada em ±1 μs. A análise de contribuições e propagação de incertezas e obtenção da atividade média foram realizadas conforme descrito na seção 4.4.2 (detalhes e resultados estão reunidos na seção 5.2.2).

#### 4.5.2.3 Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento

A partir de dados experimentais de distribuição das contagens $\gamma$, em função da energia de emissão, é possível determinar a área do pico correspondente a uma dada transição, relacionada a outras grandezas, conforme a expressão:

$$A_{\gamma i} = N_0 I_{\gamma i} \varepsilon_{\gamma i} c_i \tag{4.3}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $A_{\gamma i}$ | área do *iésimo* pico correspondente à *iésima* transição $\gamma$; |
| $N_0$ | atividade da amostra medida; |
| $I_{\gamma i}$ | probabilidade de emissão $\gamma$ da *iésima* transição; |
| $\varepsilon_{\gamma i}$ | eficiência de contagem para a energia $\gamma$ da *iésima* transição; |
| $c_i$ | correção do efeito de soma em cascata, causado por *Compton* de picos próximos. |

Com esta expressão, podem-se determinar as probabilidades de emissão $\gamma$ por decaimento, obtendo-se experimentalmente a área do pico, a atividade da amostra, as eficiências de contagem e as correções para o 'efeito soma'.

As áreas de cada pico ($A_{\gamma i}$) foram obtidas medindo-se as amostras de $^{67}$Ga em espectrômetro de alta resolução (REGe) e processando-se os dados obtidos com o programa ALPINO [44] para cinco transições $\gamma$, com as seguintes energias (keV): 93,31 (metaestável); 184,58; 208,95; 300,22; 393,53.

As atividades das cinco amostras ($N_0$) são as determinadas no processo de padronização descrito na seção 4.5.2.2.

A curva de eficiência em função da energia ($\varepsilon_\gamma \times E$) foi obtida para o espectrômetro REGe, ajustando-se um polinômio de quinto grau com o programa LOGFIT [42], em escala log-log. O grau do polinômio foi determinado pelo menor valor de Qui-Quadrado obtido. Foram utilizados vinte e cinco pontos experimentais, medindo-se várias fontes padrão ($^{60}$Co, $^{133}$Ba, $^{152}$Eu, $^{166m}$Ho e $^{241}$Am), preparadas em substrato de COLLODION e calibradas em sistema de coincidências 4πβ-γ, de modo a abranger uma faixa de energias entre 59 e 1408 keV. As incertezas parciais e correlações foram consideradas, aplicando-se as seguintes expressões para ajuste por mínimos quadrados:

$$\vec{y}_{exp} = D\vec{p} \tag{4.4}$$

$$V_p = \left(D^T V_y^{-1} D\right)^{-1} \tag{4.5}$$

$$\vec{p} = V_p \, D \, V_y^{-1} \, \vec{y}_{exp} \tag{4.6}$$

Onde:

| | |
|---|---|
| $\vec{y}_{exp}$ | vetor de resultados experimentais para as probabilidades por decaimento (dimensão: 25×1); |
| $D$ | matriz de planejamento (dimensão: 5×25); |
| $\vec{p}$ | vetor de parâmetros da solução (dimensão: 5×1); |
| $V_y$ | matriz de covariância do vetor $\vec{y}_{exp}$ (dimensão: 25×25); |
| $V_p$ | matriz de covariância do vetor $\vec{p}$ (dimensão: 5×5); |
| $T$ | indica transposição de matriz. |

A matriz de planejamento, $D$, é dada por:

$$D = \begin{bmatrix} 1\,1\,1\,1\,1\,0 & \cdots & 0\,0\,0\,0\,0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ 0\,0\,0\,0\,0\,0 & \cdots & 1\,1\,1\,1\,1 \end{bmatrix} \tag{4.7}$$

O vetor $\vec{p}$ fornece as médias ponderadas das probabilidades de emissão γ, por decaimento, para os cinco níveis de transição listados acima, considerando incertezas parciais e correlações.

Os fatores de correção do efeito de soma ($c_i$) são próximos da unidade e foram obtidos por Monte Carlo, com o programa COINCIG [41]. Estes fatores corrigem perdas ou acréscimos nas áreas dos picos ocasionados por interações Fotoelétrica ou *Compton* produzidas por outras radiações γ, que estejam em cascata com o γ considerado. A área de um pico isolado no espectro γ tende a ser menor, pois parte dos eventos interage no volume sensível do detector por efeito *Compton*, depositando parte da energia, e contribuindo para as contagens nas regiões espectrais abaixo do pico. Nestes casos os fatores encontrados são maiores do que a unidade. A outra situação (fatores menores do que a unidade) corresponde aos casos em que a área sofre acréscimo por contagem de eventos com energias superiores próximas que interagem por *Compton*. Certamente, os dois efeitos (perda e acréscimo de contagens) podem ocorrer simultaneamente. O programa COINCIG utiliza um arquivo de entrada com o modelo do esquema de decaimento do radionuclídeo alvo, para efetuar a simulação e cômputo de perdas e acréscimos, de modo a determinar os fatores $c_i$, para cada transição do esquema fornecido.

Para complementar, também foram determinadas as probabilidades de emissão γ para quatro transições menos intensas: 494,17; 703,11; 794,38 e 887,69 keV. Como as atividades das amostras disponíveis eram baixas para esta finalidade, utilizou-se outra amostra de $^{67}$Ga, com atividade aproximada de 730 kBq, preparada em filme de COLLODION e medida no espectrômetro REGe. Deste modo, estas probabilidades foram obtidas de forma relativa, a partir de suas áreas, tomando-se como referência as áreas e probabilidades de quatro linhas determinadas no processo anterior: 184,58; 208,95; 300,22; 393,53 keV. Portanto, obtiveram-se quatro valores para cada uma das linhas menos intensas, e os valores finais correspondem às médias ponderadas por incertezas (v. seção 4.4.2). Considerando-se o método direto (cinco linhas) e o relativo (quatro linhas), foram determinadas as probabilidades de emissão γ por decaimento para nove transições do $^{67}$Ga, cujos resultados são apresentados na seção 5.2.3.

A exatidão dos resultados de probabilidade de emissão γ está diretamente relacionada à exatidão obtida na determinação de atividade (seção 4.5.2.2). Portanto, a comparação entre os valores obtidos e valores de literatura constitui outra forma de avaliar a metodologia proposta, em adição à validação efetuada com a padronização do $^{152}$Eu.

# 5 RESULTADOS

Este capítulo reúne informações, resultados e comentários sobre as padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga, realizadas com a metodologia desenvolvida, descrita no capítulo 4. Todas as medidas foram realizadas utilizando-se o arranjo de detecção #1, FIG. 4.3 (a).

## 5.1 Padronização do $^{152}$Eu

Nesta padronização, determinou-se a atividade da amostra (parâmetro $p_1$ da expressão 3.10). Os nove pares de conjuntos de dados experimentais, combinando informações dos ramos $\beta^-$ e de captura, para as análises e ajustes da função biparamétrica 3.10, são listados na primeira coluna da TAB. 5.1. Os valores de atividade obtidos da simulação de dados por Monte Carlo são apresentados na segunda coluna de TAB. 5.1, considerando-se as transições $\gamma$ de 344 e 779 keV ($\beta^-$) e de 964 e 1408 keV (**captura**). As duas últimas colunas de TAB. 5.1 mostram os parâmetros dos ajustes realizados com o MS-Excel. Para detalhes, ver seções 3.1.2.2 (metodologia) e 4.5.1 (medidas e simulação).

**TABELA 5.1 – Atividades obtidas por Monte Carlo para o $^{152}$Eu e parâmetros de ajuste para nove combinações de dados experimentais.**

| Par de energias gama da análise [ $\beta^-$ e captura ] (keV) | Atividade teórica de Monte Carlo ($\times 10^2$ kBq g$^{-1}$) | Parâmetro $p_1$: atividade experimental ($\times 10^2$ kBq g$^{-1}$) | Parâmetro $p_2$ ($\times 10^5$ kBq g$^{-1}$) |
|---|---|---|---|
| [ 344 e 964 ] | 5,81 (7) | 5,908 (4) | 4,57 (3) |
| [ 344 e 1112 ] | - | 5,971 (8) | 5,08 (6) |
| [ 344 e 1408 ] | 5,79 (4) | 5,801 (4) | 4,32 (3) |
| [ 411 e 964 ] | - | 5,898 (5) | 3,99 (4) |
| [411 e 1112 ] | - | 5,957 (8) | 4,58 (8) |
| [411 e 1408 ] | - | 5,805 (5) | 3,73 (4) |
| [ 779 e 964 ] | 5,70 (9) | 5,832 (6) | 4,37 (4) |
| [ 779 e 1112 ] | - | 5,917 (9) | 4,92 (7) |
| [ 779 e 1408 ] | 5,62 (9) | 5,722 (5) | 4,12 (3) |

As incertezas em $p_1$ e $p_2$ indicadas na TAB. 5.1 correspondem apenas às obtidas nos ajustes biparamétricos (MS-Excel). Com estes valores de $p_1$, efetuou-se outro ajuste para a obtenção de uma média ponderada (LINFIT, v. seção 4.4.2), atribuída ao valor final da atividade da amostra de $^{152}$Eu (TAB. 5.3), e considerando-se outras contribuições para a propagação da incerteza, conforme indica a TAB. 5.2.

**TABELA 5.2 – Contribuições para a incerteza da atividade final do $^{152}$Eu.**

| Fonte de incerteza | Valor (u=1) (%) |
|---|---|
| **Correção de decaimento** | **0,15** |
| **Massa da amostra de $^{152}$Eu** | **0,20** |
| **Parâmetro de eficiência** | **0,11** |
| **Estatística de contagem beta** | **0,01** |
| **Procedimento de ajuste experimental (LINFIT)** | **0,69** |
| **Procedimento de ajuste por Monte Carlo** | **0,73** |
| **Total Experimental** | **0,74** |
| **Total Monte Carlo** | **0,78** |

Na padronização anterior do $^{152}$Eu [35], verificou-se que as amostras medidas continham impureza de $^{154}$Eu, cuja contribuição para o valor de atividade foi estimada em 0,67%. Considerando-se o decaimento dessa impureza, sua influência foi reavaliada neste trabalho em 0,5%, efetuando-se a devida correção nos resultados finais, apresentados na TAB. 5.3. Os valores experimentais foram obtidos de duas maneiras, considerando-se apenas os quatro pares utilizados para simulação e o conjunto total de nove pares.

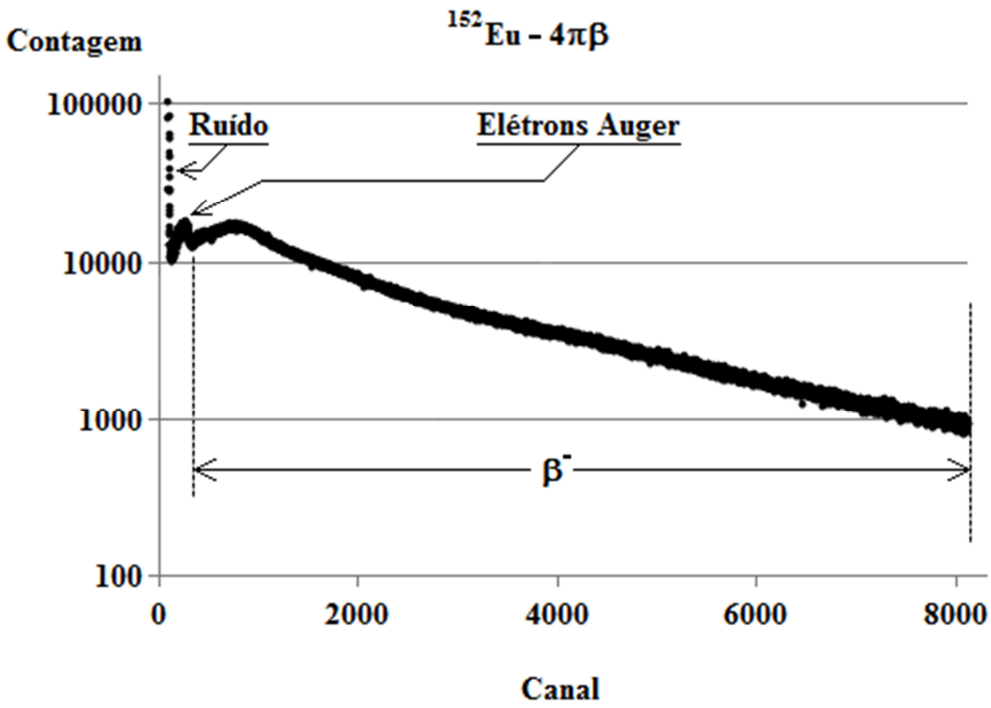
A TAB. 5.3 inclui os valores teóricos obtidos neste trabalho por simulação de Monte Carlo e aqueles obtidos por outros laboratórios, participantes da comparação internacional (BIPM), incluindo-se a referência no início do parágrafo anterior. Os resultados fornecidos pelo BIPM também são apresentados nesta tabela, correspondendo à média de quatro laboratórios e à média geral de todos os laboratórios participantes. As diferenças percentuais entre os valores deste trabalho (quatro e nove pares) e os valores das outras colunas são apresentados logo abaixo das mesmas, nas duas últimas linhas.

**TABELA 5.3 – Atividade do $^{152}$Eu (kBq g$^{-1}$) comparada a valores obtidos por Monte Carlo e por outros laboratórios.**

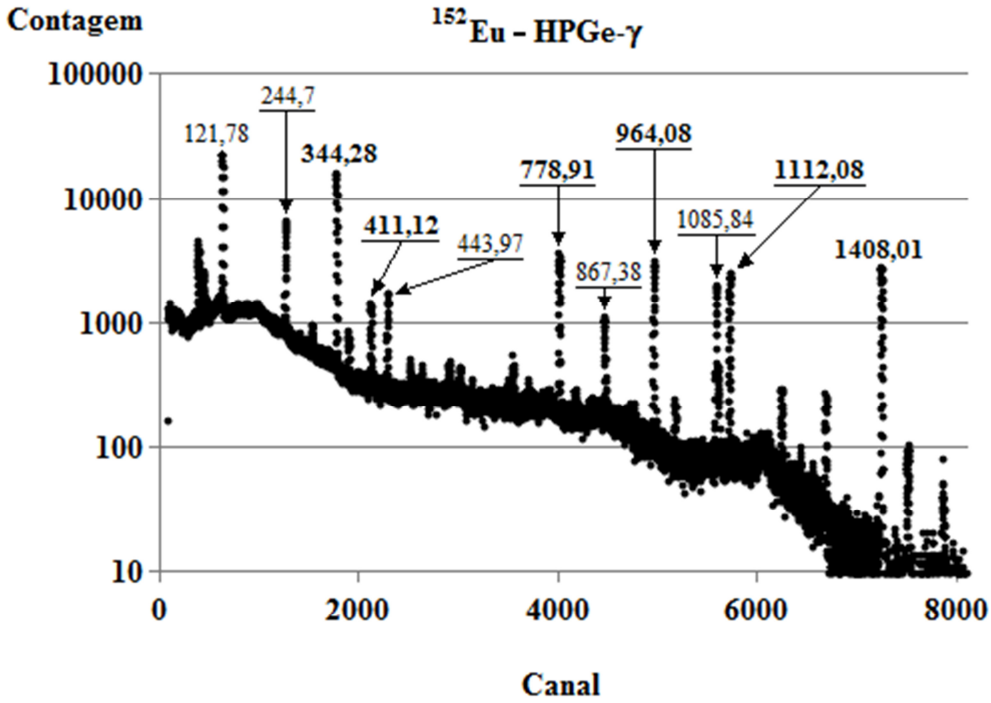
| | Presente trabalho Experimental (4 e 9 pares) | Monte Carlo (4 pares) | LMN [35] | BIPM média dos 4 laboratórios principais [35] | BIPM média geral [35] |
|---|---|---|---|---|---|
| (4 pares) | 578,1 ± 4,2 | 577,1 ± 3,6 | 575,7 ± 7,8 | 578,1 ± 9,8 | 582,0 ± 8,1 |
| (9 pares) | 583,6 ± 2,7 | | | | |
| Diferença (%) | | | | | |
| (4 pares) | - | 0,2 | 0,4 | 0,0 | -0,7 |
| (9 pares) | - | 1,1 | 1,4 | 1,0 | 0,3 |

Considerando-se as margens de incertezas, pode-se observar que os valores obtidos neste trabalho, experimentais e teóricos, concordam plenamente entre si e com os valores obtidos anteriormente, indicando que esta padronização foi bem sucedida. Os valores experimentais obtidos com as mesmas condições da simulação (quatro pares) diferem em 0,2%. Outras diferenças são da ordem de 1% ou menores, sendo que a maior discrepância, de 1,4%, ocorre entre o valor final geral (nove pares) e o obtido na padronização anteriormente realizada no LMN [35]. Este mesmo valor geral difere 0,3% da média do laboratórios fornecida pelo BIPM. Ressalta-se que a incerteza final, para um intervalo de confiança de 90%, é da ordem de 0,5%. A incerteza obtida por simulação de Monte Carlo é de 0,6%. As medidas anteriores fornecem incertezas de 1,4% (LMN e média geral de laboratórios – BIPM) e 1,7% (média dos quatro principais laboratórios – BIPM).

A FIG. 5.1 mostra espectros típicos de amplitudes de pulso em escala monolog, obtidos das medidas do $^{152}$Eu (CAT), para os canais de contagem $4\pi\beta$ e HPGe-$\gamma$ (alta resolução). A complexidade do espectro $\gamma$ evidencia a vantagem de se realizar análises em alta resolução por *software*. Pode-se observar grande número de transições (picos), inclusive com energias próximas. O processo de análise seria inviável com métodos convencionais, ou crítico, no caso de utilizar dados NaI(Tl)-$\gamma$, de baixa resolução.




**(a)** Distribuição de contagens obtida para o contador proporcional.




**(b)** Distribuição de contagens obtida para o detector de germânio hiperpuro.

**FIGURA 5.1 – Espectros de amplitudes para o $^{152}$Eu obtidos com o programa CAT.**

## 5.2 Padronização do $^{67}$Ga

Esta seção sintetiza os resultados da padronização do $^{67}$Ga, incluindo a meia-vida do nível de transição de 93 keV, as atividades das cinco amostras medidas e as probabilidades de emissão $\gamma$ das nove transições enumeradas na seção 4.5.2.3.

### 5.2.1 Meia-Vida da Transição de 93 keV

Em primeiro lugar, apresentam-se considerações sobre as fontes de incertezas que poderiam afetar o processo de determinação da meia-vida do nível de transição metaestável (93 keV) do $^{67}$Ga. Na sequência, apresentam-se os resultados obtidos e comentários.

#### 5.2.1.1 Avaliação de Prováveis Contribuições para a Incerteza

Alguns fatores (v. seção 4.5.2.1) podem afetar a escala de medida de tempo de SCS. Esta seção aponta as principais contribuições para a incerteza e sua relevância, com comentários baseados em ensaios realizados ou em dados técnicos de fabricante.

O primeiro fator diretamente relacionado ao eixo de tempo das medidas é a frequência de amostragem de PCI-6132, configurada em 2,5 MHz. Portanto, a unidade discreta de medida de tempo corresponde ao período desse sinal, ou seja, resolução de 400 ns. Esta resolução é plenamente satisfatória aos propósitos de medida de coincidências na faixa de microssegundos. Entretanto a resolução final é da ordem de nanossegundos, ou melhor, graças à reconstituição de sinal realizada durante a aquisição de dados. Desta forma, o possível problema está relacionado à exatidão da frequência do sinal interno de amostragem. O fabricante estipula uma exatidão de 0,01% [38]. Realizaram-se medidas com um gerador de sinais Agilent [63], de alta exatidão e estabilidade (±1 ppm, ±15 pHz), nas frequências de 1000, 5000, 10000 e 20000 Hz e a exatidão obtida na escala de tempo foi melhor que 0,0014%. Destaca-se que, embora as taxas (frequências) de pulso acima de 5 kHz estejam além das especificações de SCS, o sistema respondeu satisfatoriamente às

frequências de 20 kHz, embora com um tempo de aquisição maior, em razão do tempo necessário à transferência de dados (proporcional à taxa de pulsos) para arquivos em formato ASCII (um por canal), durante a aquisição. É possível utilizar outras técnicas de aquisição, com arquivos múltiplos em formato binário e transferência temporária para memória (*buffer*), e empregar unidades de disco mais rápidas, de modo a ampliar a capacidade de padronização de SCS para amostras com atividades da ordem de 20 a 30 kBq. Em suma, considerando-se as especificações técnicas e os testes realizados, concluiu-se que a incerteza associada à escala de tempos de SCS pode ser desprezada.

A correção do decaimento de contagens durante o intervalo de tempo de resolução de um canal de coincidências é da ordem de 0,4%. Embora esta correção seja significativa, ela deve ser aplicada a todos os canais do espectro de coincidências, como fator constante, de modo que a meia-vida a determinar permanece inalterada. Por este motivo, esta correção foi desconsiderada.

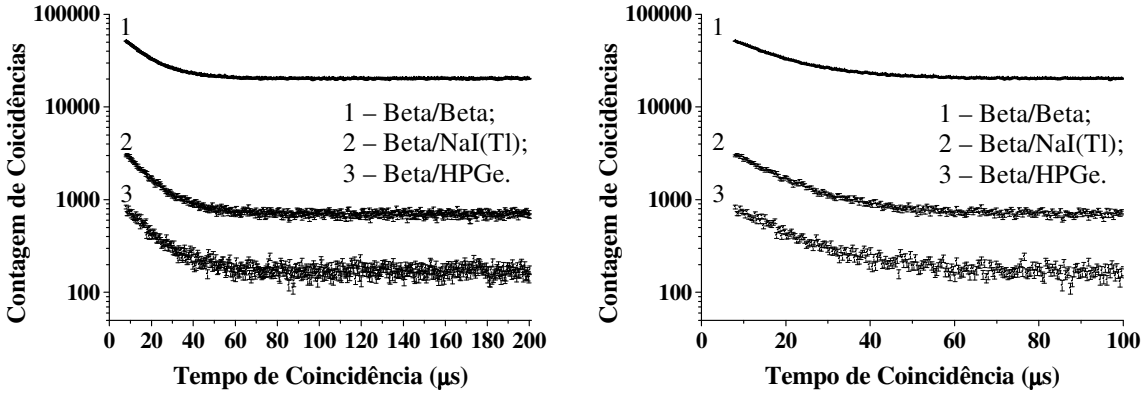
Os instantes de cada evento são afetados pelos tempos de formação dos pulsos de detecção. Esta flutuação intrínseca pode ser aproximada a uma distribuição Normal (Gaussiana). Portanto, a contagem de pulsos coincidentes em uma classe de tempos corresponde a uma somatória que inclui o centroide da distribuição da própria classe e as parcelas correspondentes às distribuições dos canais vizinhos (de ambos os lados). Deste modo, a curva se afasta do caso ideal onde cada canal é representado por uma função delta. Para avaliar o grau de influência desse efeito, introduziram-se alargamentos artificiais adicionais às contagens de cada canal, utilizando-se a distribuição do pico γ-pronto de 184 keV, como modelo para as flutuações mencionadas. O processo foi repetido de forma iterativa (entre uma a dez vezes), observando-se apenas um efeito de suavização da exponencial experimental (*smoothing*). Os resultados de ajustes, obtidos com ou sem alargamento, são equivalentes. Este processo de alargamento artificial também foi realizado sobre uma distribuição exponencial exata (teórica), e os ajustes realizados com as curvas assim obtidas confirmam que esse efeito pode ser desconsiderado sem gerar tendenciosidade no resultado.

A influência do tempo-morto de medida sobre os espectros de coincidências também foi avaliada, realizando-se análises com diferentes valores: 3; 6; e 10 μs. Como os

resultados de ajuste foram compatíveis, optou-se pela utilização de tempo-morto de 3 μs, para garantir a rejeição da multiplicidade de registros dos pulsos saturados (seção 4.2.2) e uma boa estatística de contagem, em razão de uma rejeição de pulsos (SDT) satisfatoriamente pequena.

#### 5.2.1.2 Distribuições de Coincidências e Ajustes

A FIG. 5.2 apresenta as distribuições obtidas nos três métodos, para a amostra #14826, em gráfico monolog. O espectro foi obtido para 4096 canais, mas somente a região à direita do pico (tempos não negativos: decaimento metaestável) foi utilizada para os ajustes. A FIG. 5.2 (a) mostra a região analisada. Na FIG. 5.2 (b) o eixo de tempos foi expandido para melhor visualização da região do decaimento. Observa-se que a partir de 80 μs, praticamente, as contagens correspondem às coincidências acidentais ($N_a$).




**(a)** fundo de escala de 200 μs. **(b)** fundo de escala de 100 μs.

**FIGURA 5.2 – Distribuições de tempos de coincidências atrasadas obtidas com a amostra #14826.**

As distribuições dos tempos de coincidência entre eventos prontos (*Auger* originados da captura) e atrasados (com origem no nível metaestável de 93 keV) foram obtidas para as cinco amostras (TAB. 4.2), utilizando-se três combinações de dados, conforme seção 4.5.2.1. Para cada distribuição, realizou-se o ajuste da função dada pela expressão 4.2, utilizando o programa Microcal Origin 4.00 [49] para determinar os

parâmetros ($N_m$, $\lambda$ e $N_a$), e a meia-vida do decaimento metaestável (expressão 2.3). A região coincidências prontas (pico) exerce forte influência sobre este ajuste, sendo, por este motivo, desconsiderada. Os resultados de cada ajuste foram então agrupados conforme a TAB. 5.4. Para cada método determinou-se o valor médio da meia-vida (μs) entre as cinco amostras (última coluna).

**TABELA 5.4 – Resultados dos ajustes para cada amostra em três diferentes métodos de análise e meia-vida obtida para o nível metaestável do $^{67}$Ga.**

| Método | Amostra | Parâmetros $N_m$ | $\lambda$ (μs)$^{-1}$ | $N_a$ | $T_{1/2}$ (μs) | Média $T_{1/2}$ (μs) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 4πβ-4πβ | #14821 | 11395 (67) | 0,07539 (35) | 2837 (2) | 9,19 (4) | 9,144 (18) |
| | #14822 | 12868 (66) | 0,07559 (30) | 2750 (2) | 9,17 (4) | |
| | #14823 | 17346 (71) | 0,07595 (24) | 2871 (2) | 9,13 (3) | |
| | #14824 | 11592 (73) | 0,07647 (39) | 4681 (3) | 9,06 (5) | |
| | #14826 | 14764 (83) | 0,07563 (34) | 5055 (3) | 9,17 (4) | |
| 4πβ-NaI(γ) | #14821 | 473 (5) | 0,07593 (93) | 87,7 (4) | 9,13 (11) | 9,22 (4) |
| | #14822 | 414 (5) | 0,07382 (97) | 75,0 (4) | 9,39 (12) | |
| | #14823 | 689 (6) | 0,07433 (70) | 98,2 (4) | 9,33 (9) | |
| | #14824 | 573 (6) | 0,07569 (10) | 187,8 (5) | 9,16 (1) | |
| | #14826 | 735 (7) | 0,07600 (86) | 172,4 (6) | 9,12 (10) | |
| 4πβ-HPGe(γ) | #14821 | 133 (3) | 0,0743 (16) | 19,6 (2) | 9,33 (21) | 9,22 (9) |
| | #14822 | 147 (3) | 0,0776 (17) | 18,6 (2) | 8,93 (20) | |
| | #14823 | 193 (3) | 0,0753 (13) | 19,8 (2) | 9,21 (16) | |
| | #14824 | 155 (3) | 0,0759 (19) | 42,7 (3) | 9,14 (23) | |
| | #14826 | 196 (4) | 0,0730 (15) | 40,0 (3) | 9,50 (19) | |

Os valores médios de meia-vida, TAB. 5.4, foram ajustados utilizando-se o programa LINFIT, para obtenção da média geral, ponderada pelas incertezas. Este ajuste resultou em Qui-Quadrado reduzido de 1,74, de modo que as incertezas associadas às médias parciais (obtidas em cada método) foram reavaliadas, realizando-se novo ajuste. Os valores finais são apresentados na TAB. 5.5. Considerando-se as incertezas, para intervalo de confiança de 68,3%, observa-se boa concordância entre a meia-vida deste trabalho e as da literatura [28, 64-66], também enumeradas nesta tabela. As diferenças estão situadas na faixa de 0,1 a 2%.

**TABELA 5.5 – Valores finais da meia-vida do nível metaestável do $^{67}$Ga obtidos neste trabalho e valores de literatura.**

| Método | $T_{1/2}$ (μs) Presente trabalho | Attie et al. 1998 | Hwang et al. 1996 | Roodbergen et al. 1975 | Lewis et al. 1973 |
|---|---|---|---|---|---|
| 4πβ-4πβ | 9,144 (23) | | | | |
| 4πβ-NaI(γ) | 9,22 (6) | | | | |
| 4πβ-HPGe(γ) | 9,22 (12) | | | | |
| Média Geral | 9,157 (21) | 9,34 (20) | 9,01 (3) | 9,1 (4) | 9,15 (14) |
| Diferença (%) | 0 | -2,0 | 1,6 | 0,6 | 0,1 |

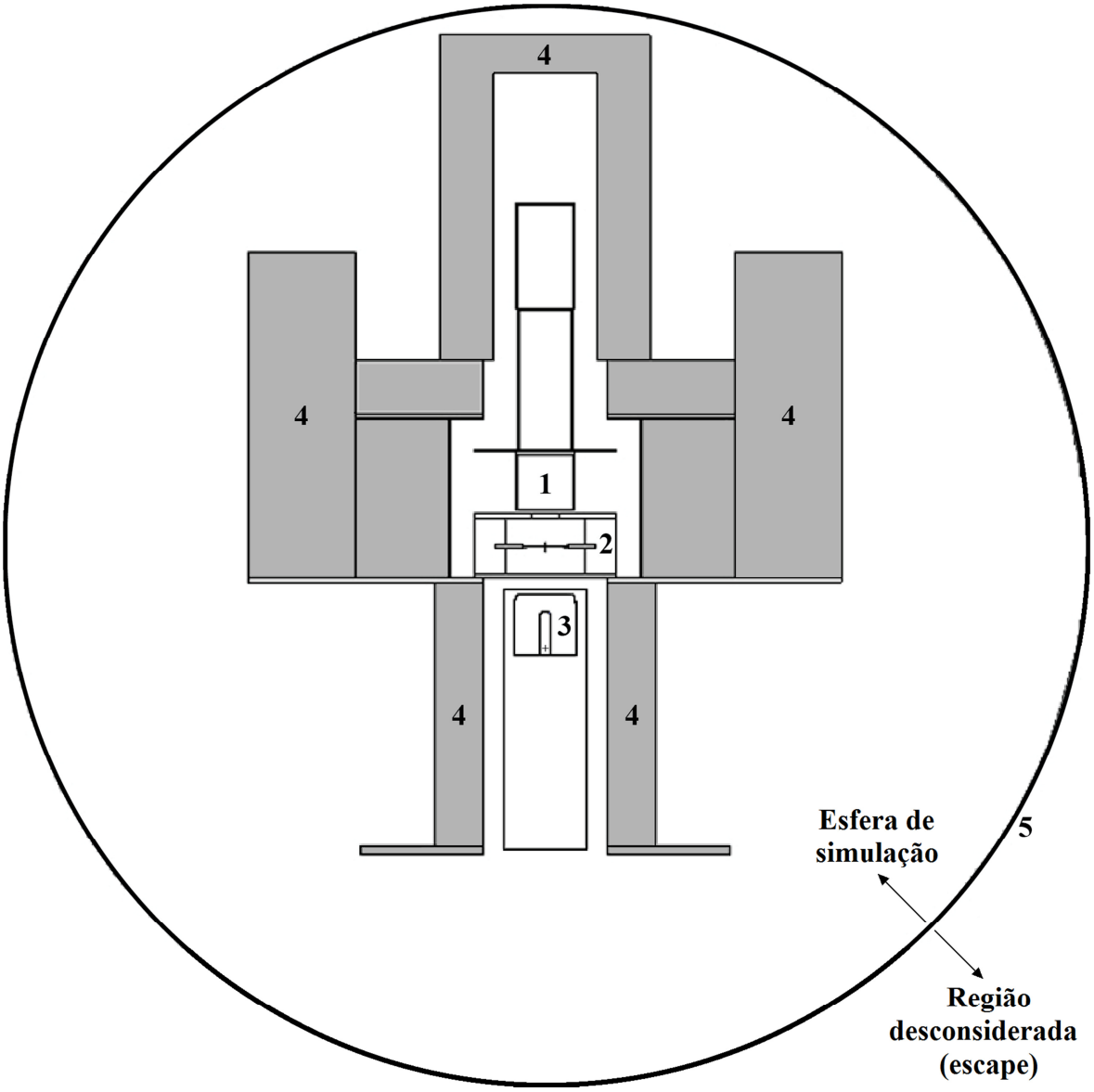
### 5.2.2 Atividade Normalizada por Monte Carlo

Esta seção reúne resultados das medidas de atividade das amostras de $^{67}$Ga (seção 4.5.2.2), obtidas de análises das coincidências prontas entre pulsos 4πβ e pulsos γ da transição de 184,58 keV. As análises foram realizadas utilizando-se dados de alta resolução de energia γ, obtidos do detector HPGe do arranjo de detecção #1.

A normalização das curvas de extrapolação utiliza uma curva teórica obtida pelo método de Monte Carlo, em simulação de dez milhões de histórias (valor teórico da extrapolação: 10 MBq $g^{-1}$ – v. seção 4.4.1).

A simulação com o programa ESQUEMA reproduz o formalismo da expressão 3.11, considerando valor de tempo-morto extrapolado a infinito, uma amostra de massa unitária (1 g) com geometria típica e o esquema de decaimento do $^{67}$Ga.

A geometria do arranjo de detecção #1, FIG. 4.3 (a), foi modelada utilizando-se o programa MCNP5 [48], que inclui o código VISED, com o qual se obteve a reprodução da FIG. 5.3, à próxima página.




**Legenda:**

1- **Via γ: detector cintilador – NaI(Tl) – e tubo fotomultiplicador (acima);**

2- **Via β: contador proporcional a gás fluente – 4π(PC);**

3- **Via γ: detector de germânio hiperpuro – HPGe;**

4- **Blindagem de chumbo (estrutura cinza);**

5- **Esfera de escape da simulação de Monte Carlo (MCNP5): define o volume efetivo, interno à esfera, onde as interações são consideradas pela simulação.**

**FIGURA 5.3 – Diagrama esquemático do Arranjo de Detecção #1 do Sistema de Coincidência do LMN, obtido com o código VISED-MCNP5.**

As análises de dados para cada amostra resultaram em curvas de extrapolação com diferentes comportamentos, evidenciando prováveis variações na geometria entre as fontes, conforme discussão abaixo (nesta mesma seção). A FIG. 5.4 mostra dados das curvas de extrapolação obtidas para amostra #14821 (típica), para tempo-morto de 3 e 99 μs, e a curva teórica com valores normalizados aos experimentais (linha contínua).

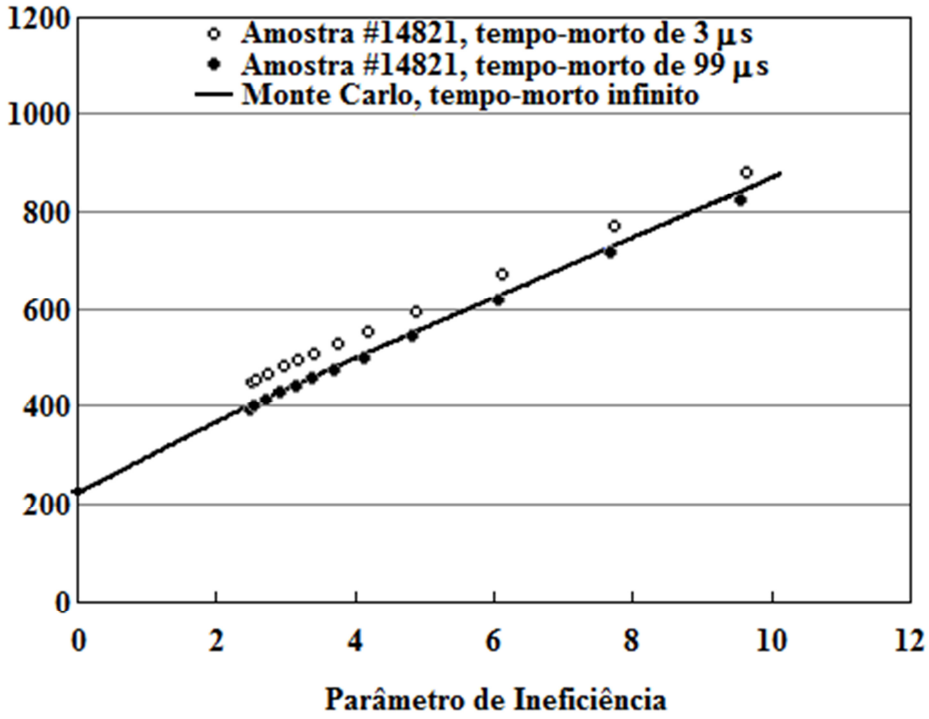
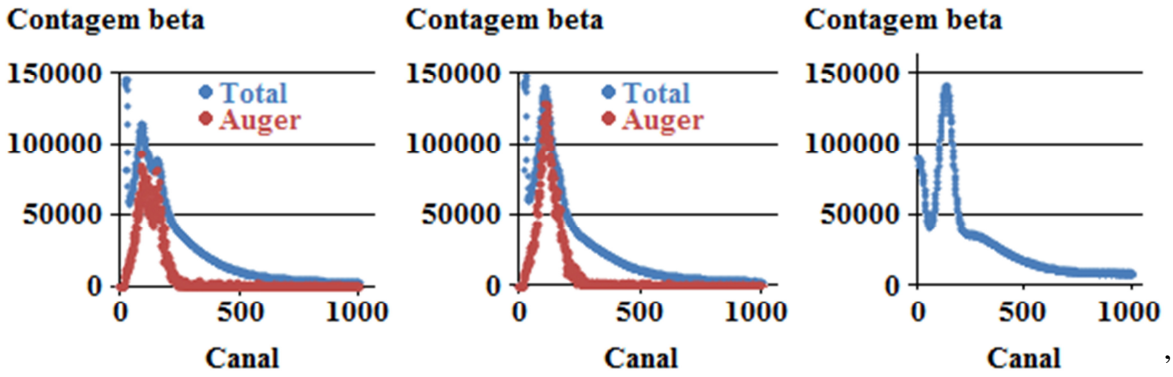



**FIGURA 5.4 – Curvas de extrapolação da amostra #14821, obtidas para os valores de 3 e 99 μs de tempo-morto, e curva teórica de Monte Carlo normalizada.**

No gráfico acima se pode observar a excelente normalização entre dados experimentais obtidos para a amostra #14821 (SDT de 99 μs – pontos em negro) e teóricos (linha contínua). As demais normalizações consideram as curvas experimentais obtidas com tempo-morto ($\tau$) de 99 μs. Na distribuição de tempos de coincidências atrasadas apresentada na FIG. 5.2, pode-se observar que o valor de 99 μs representa boa aproximação de tempo-morto infinito. Na prática, para o $^{67}$Ga, fazendo-se $\tau$ = 99 μs na expressão 3.11, observa-se que a contribuição de eventos atrasados sobre a contagem tende a zero, sendo possível utilizar o método de extrapolação descrito na seção 3.1.2.1.

Como mencionado acima, os resultados são afetados pela geometria da amostra. As curvas de extrapolação das amostras #14823 e #14824, por exemplo, resultaram irregulares, provavelmente, em razão de diferenças que as distanciam do padrão geométrico médio (utilizado na modelagem teórica). O processo de preparação de amostras do LMN, por deposição e secagem da solução radioativa matriz (neste caso: $^{67}$GaCl) sobre películas poliméricas pode dar origem a amostras com massas, espessuras ou diâmetros diferentes. Consequentemente, a auto-absorção de elétrons e a atenuação das energias podem variar de uma amostra a outra, dando origem a diferentes distribuições, como se observa na FIG. 5.5. A FIG. 5.5, (a) e (b), apresenta os espectros experimentais de energias depositadas por elétrons, para as amostras #14824 e #14826 respectivamente (em azul). Na mesma figura, as curvas em vermelho representam as distribuições experimentais dos elétrons correlacionados às coincidências (*Auger*), com escala ampliada para melhor visualização. Na FIG. 5.5 (c) observa-se a distribuição teórica de uma amostra com geometria típica (escala ajustada às magnitudes experimentais).

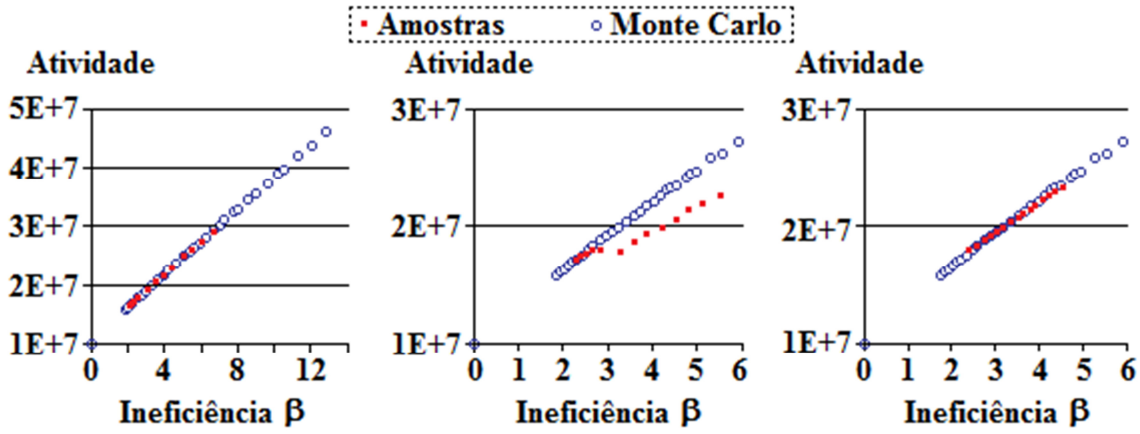



**(a)** amostra #14824. **(b)** amostra #14826. **(c)** Monte Carlo.

**FIGURA 5.5 – Espectros de deposição de energia β obtidos para duas amostras e por simulação de Monte Carlo.**

O pico de elétrons *Auger* do espectro obtido com a amostra #14824, FIG. 5.5 (a), apresenta dois picos. Essa tendência também pode ser notada na distribuição da amostra #14826, FIG. 5.5 (b), porém de forma pouco acentuada, aproximando-se da curva teórica de Monte Carlo da FIG. 5.5 (c). Diferenças de perfil espectral como estas podem afetar os processos de análise e de normalização, pois a discriminação eletrônica empregada, SAD,

está diretamente relacionada à distribuição de energia depositada por elétrons. Em casos simples, como o $^{60}Co$, o processo de padronização é praticamente imune às variações geométricas das amostras. Esta imunidade é decorrência direta de um decaimento simples, com quantidade desprezível de eventos de conversão interna (os coeficientes de conversão são da ordem de $10^{-5}$). Entretanto, para as amostras #14823 e #14824 de $^{67}Ga$, os primeiros processos de análise e normalização resultaram insatisfatórios. Este problema é ilustrado na FIG. 5.6, que reúne diferentes curvas de extrapolação obtidas experimentalmente, para as amostras #14826, FIG. 5.6 (a), e #14823, FIG. 5.6 (b) e (c). Em particular, a FIG. 5.6 (c) mostra a curva obtida na segunda análise da amostra #14823, utilizando uma abordagem de discriminação eletrônica diferenciada (SAD modificado), conforme discussão nos próximos parágrafos.




**(a)** análise da amostra #14826. **(b)** primeira análise da amostra #14823. **(c)** segunda análise da amostra #14823.

**FIGURA 5.6 – Curvas de extrapolação normalizadas por Monte Carlo obtidas para as amostras #14823 e #14826.**

A FIG. 5.6 (a) evidencia a excelente normalização obtida para a amostra #14826, indicando que sua geometria deve ter resultado similar ao padrão idealizado para simulação. As amostras #14821 e #14822 também apresentaram comportamento satisfatório. A FIG. 5.6 (b) mostra a curva de extrapolação anômala, de análise efetuada com a amostra #14823, provavelmente por apresentar uma geometria diferente do padrão de simulação, como maior espessura e, portanto, maior auto-absorção de elétrons.

O processo de normalização da curva experimental irregular apresentada na FIG. 5.6 (b) é crítico e praticamente inviável. Entretanto, a partir da observação da distribuição de elétrons *Auger*, em vermelho nas FIG. 5.5 (a) e (b), constata-se que estes não contribuem para as contagens do pico nos canais iniciais do espectro (baixas energias), concluindo-se que o mesmo é formado apenas por elétrons de conversão interna. A simulação de Monte Carlo confirma o fato, mostrando que elétrons de conversão depositam uma fração muito pequena de sua energia. O algoritmo SAD efetua discriminação por limiar de amplitude, excluindo justamente elétrons na região inicial do espectro (elétrons não correlacionados às coincidências, neste caso particular), contrariando a exigência metodológica de exclusão seletiva de eventos que dão origem a coincidências. Provavelmente em razão de uma maior auto-absorção, pode-se deduzir que, para as amostras que apresentaram problemas com o método original, a distribuição de elétrons de conversão está mais concentrada na região inicial do espectro. Por este motivo, optou-se pela reestruturação do método SAD, de forma de efetuar a correção adequada.

Deste modo, as amostras #14823 e #14824 foram reavaliadas e, graças a uma reavaliação metodológica simples, as suas padronizações foram viabilizadas. A FIG. 5.6 (c) apresenta uma curva de extrapolação com boa regularidade, obtida de análise da amostra #14823, utilizando SAD modificado. As atividades normalizadas por Monte Carlo obtidas para estas amostras são plenamente satisfatórias (v. seção 5.2.2).

Para a compreensão do problema exposto e da solução adotada, a FIG. 5.7 esquematiza duas análises distintas, que utilizam os dois métodos de discriminação β: 1 – SAD original (diagrama superior); 2 – SAD modificado (abaixo). As linhas horizontais contínuas correspondem aos intervalos de amplitudes dos pulsos β aceitos, em cada uma das cinco iterações (em cada análise). Na análise 1 (SAD original), excluem-se progressivamente eventos do início do espectro, compostos prioritariamente por elétrons de conversão, responsáveis pela inclinação da curva de extrapolação (método equivocado). A análise 2 (SAD modificado) considera duas regiões espectrais, fixando o pico de elétrons de conversão, em todas as iterações, na categoria de eventos válidos, e efetuando a rejeição progressiva, de modo similar ao método original, na segunda região, correspondente ao pico de elétrons *Auger*, responsáveis por coincidências (método correto).

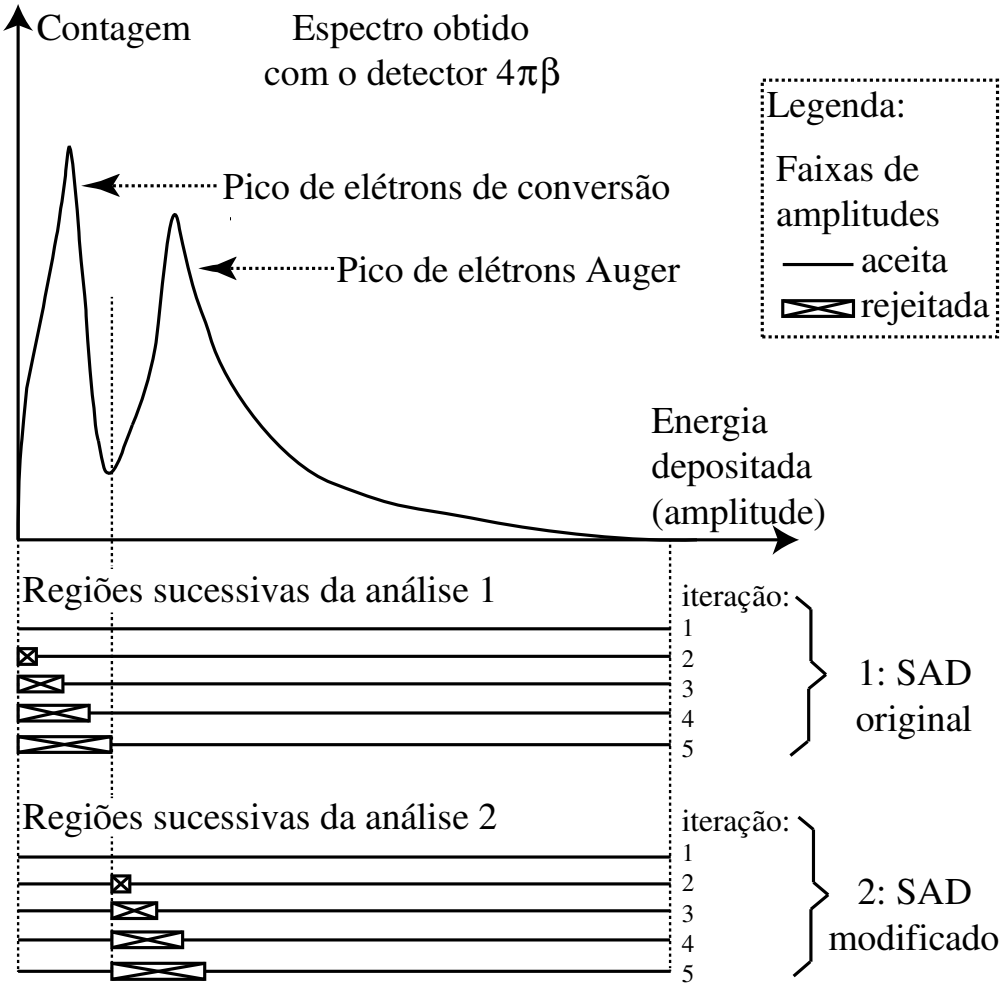



**FIGURA 5.7 – Dois métodos de discriminação eletrônica: SAD e SAD modificado.**

Ressalta-se que a abordagem criada a partir das observações apontadas para o $^{67}$Ga mantém o rigor metodológico, representando um passo para o desenvolvimento de um algoritmo de discriminação eletrônica equivalente ao método de inserção de atenuadores de elétrons. A partir do registro dos eventos provenientes do contador proporcional (via de detecção 4πβ), deve-se introduzir a capacidade de distinguir os elétrons que podem gerar coincidências ($\beta; Auger$) daqueles não responsáveis por coincidências (elétrons de conversão), de modo a obter as respectivas taxas de contagens ($\boldsymbol{N_C}$ e $\boldsymbol{N_{ce}}$). Normalmente, estas duas categorias de partículas são emitidas em faixas de energia distintas. A obtenção de taxas de contagens independentes é simples quando a distribuição de energias obtida corresponde ao espectro de energia emitida. Entretanto, quando a energia depositada corresponde a uma fração daquela emitida, os registros dos eventos de cada categoria podem ocupar regiões espectrais próximas, dificultando o processo de discriminação.

A normalização das atividades foi realizada conforme descrição da seção 4.5.2.2. As atividades teóricas foram obtidas por interpolação linear dos dados de Monte Carlo aos valores experimentais de abscissa (fatores de ineficiência). Os valores extrapolados de cada amostra, o valor médio ponderado pelas incertezas, e a matriz de correlação estão reunidos na TAB. 5.6. As incertezas são calculadas para intervalo de confiança de 90% (u = 1). O valor médio de atividade, entre amostras, foi obtido com ponderação pelas incertezas individuais. Observa-se baixa correlação entre as incertezas totais, pois estas estão associadas, em maior grau, à estatística de contagem de coincidências. Grandezas correlacionadas, como a massa das amostras e os fatores de correção de decaimento contribuem pouco para as incertezas totais.

**TABELA 5.6 – Valores de atividade das amostras de $^{67}$Ga, atividade média e matriz de correlação.**

| Amostra de $^{67}$Ga | Atividade (kBq g$^{-1}$) | Incerteza Combinada (%) | Matriz de Correlação (x1000) | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| #14821 | 223,35 | 0,65 | 1000 | | | | |
| #14822 | 224,86 | 0,62 | 26 | 1000 | | | |
| #14823 | 220,25 | 0,87 | 19 | 19 | 1000 | | |
| #14824 | 222,70 | 0,73 | 22 | 23 | 17 | 1000 | |
| #14826 | 222,97 | 0,56 | 29 | 30 | 21 | 26 | 1000 |
| Média | 223,11 | 0,31 | | | | | |

As incertezas combinadas da TAB. 5.6 são obtidas por propagação de incertezas parciais, conforme os valores de uma amostra típica (#14821), apresentados na TAB. 5.7. Estabeleceu-se correlação unitária para a taxa de contagens $\gamma$, pois todos os pontos experimentais para ajuste são obtidos de um mesmo conjunto de dados $\gamma$. As incertezas individuais das atividades, TAB. 5.6, estão na faixa de 0,56 a 0,87%, sendo a maior contribuição proveniente da estatística de contagens de coincidências (como já mencionado). A média ponderada da atividade das amostras de $^{67}$Ga é 223,11 (69) kBq g$^{-1}$ (correspondendo à incerteza total de 0,31%, apresentada na TAB. 5.6).

**TABELA 5.7 – Contribuições parciais consideradas na propagação da incerteza total na atividade.**

| Fonte de incerteza no cálculo de Atividade | Incerteza (u=1) (%) | Correlação |
|---|---|---|
| **Massa** | **0,10** | **1** |
| **Decaimento Radioativo** | **0,02** | **1** |
| **Estatística de contagem Beta (por ponto)** | **0,03** | **0** |
| **Estatística de contagem Gama (por ponto)** | **0,32** | **1** |
| **Estatística de contagem de Coincidência (por ponto)** | **0,78** | **0** |
| **Incerteza combinada do ajuste (todos os pontos)** | **0,65** | |

### 5.2.3 Probabilidade de Emissão Gama por Decaimento

Esta seção apresenta os resultados da determinação das probabilidades de emissão γ por decaimento para nove transições do $^{67}$Ga. As etapas do processo e os métodos utilizados estão descritos com mais detalhes na seção 4.5.2.3.

A primeira etapa da determinação de probabilidades de emissão γ consistiu em calibrar a eficiência de detecção do espectrômetro REGe em função da energia. A expressão 4.3 mostra as grandezas que exercem influência sobre a área medida para uma dada transição. As mais significativas são: a eficiência de contagem γ e a atividade da amostra. O programa ALPINO utiliza as eficiências de contagem e os dados de contagem obtidos com o detector REGe, para a determinação das atividades relativas a cada pico (transição) γ. Deste modo, a análise depende da exatidão dos valores de eficiência de REGe. Com este procedimento, obteve-se a curva de calibração apresentada na FIG. 5.8, por ajuste em escala log-log de um polinômio de quinto grau aos dados experimentais (25 pontos). O gráfico da FIG. 5.9 apresenta os resíduos do ajuste efetuado, e os parâmetros de ajuste e respectiva matriz de covariância encontram-se na TAB. 5.8.

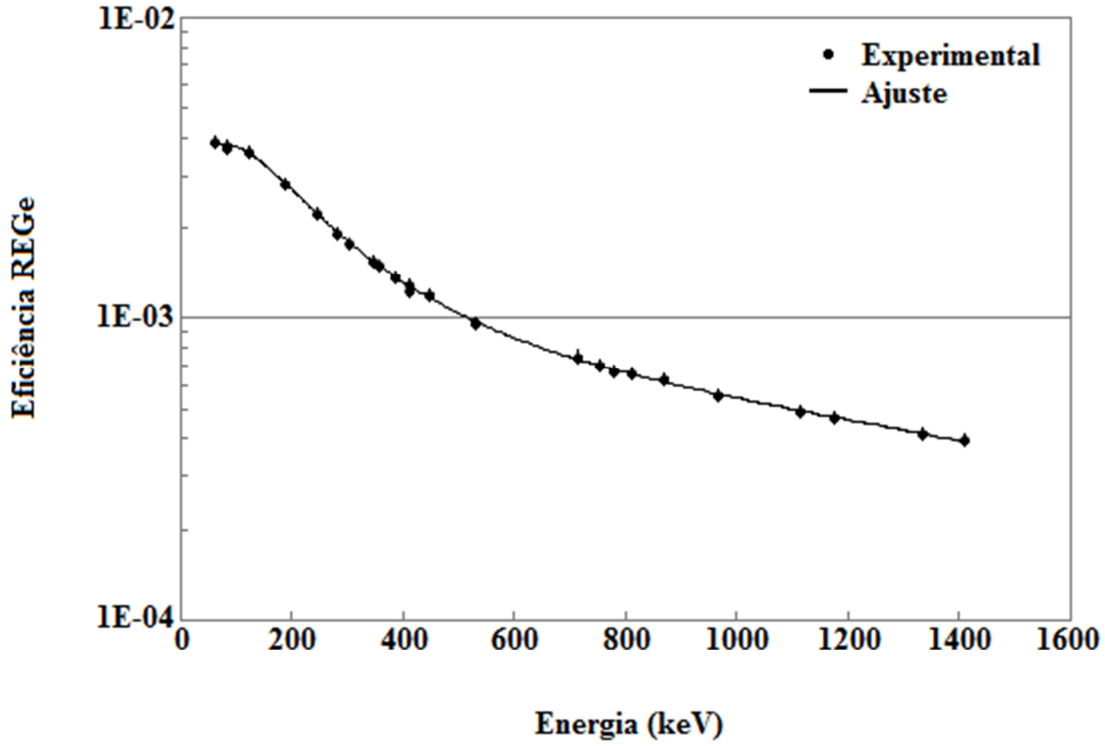



**FIGURA 5.8 – Curva de calibração em energia para o detector REGe.**

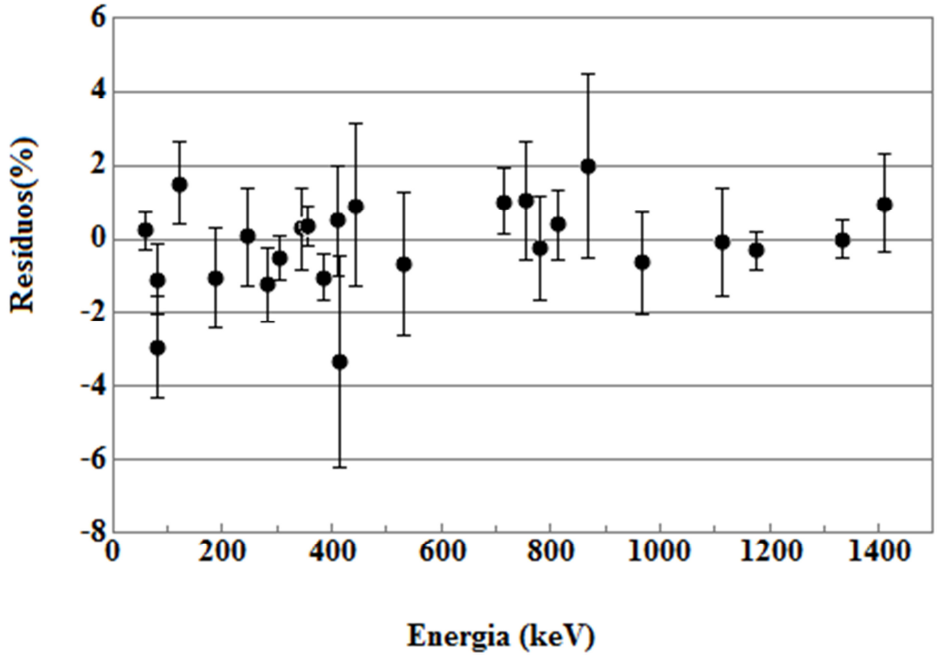



**FIGURA 5.9 – Resíduos percentuais entre valores experimentais e dados ajustados para as eficiências do detector REGe.**

**TABELA 5.8 – Parâmetros de eficiência do detector REGe e matriz de covariância correspondente ao ajuste polinomial de quinto grau em escala log-log.**

| Parâmetros de ajuste | Valor | Matriz de Covariância | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| $a_0$ | 2,37E+06 | 5,63E+05 | | | | | |
| $a_1$ | -2,28E+06 | -5,15E+05 | 4,70E+05 | | | | |
| $a_2$ | 8,45E+05 | 1,86E+05 | -1,70E+05 | 6,15E+04 | | | |
| $a_3$ | -1,54E+05 | -3,32E+04 | 3,04E+04 | -1,10E+04 | 1,97E+03 | | |
| $a_4$ | 1,37E+04 | 2,94E+03 | -2,69E+03 | 9,74E+02 | -1,75E+02 | 1,55E+01 | |
| $a_5$ | -4,81E+02 | -1,03E+02 | 9,42E+01 | -3,41E+01 | 6,12E+00 | -5,42E-01 | 1,90E-02 |
| $\chi^2$ | 1,68 | | | | | | |

O Qui-Quadrado reduzido do ajuste foi de 1,68 e as incertezas totais nas eficiências interpoladas situam-se na faixa de 0,37 a 0,62%. Após normalização pela raiz quadrada do Qui-Quadrado reduzido, as incertezas nas eficiências resultaram de 0,48 a 0,79%. As probabilidades obtidas encontram-se na TAB. 5.9, com as incertezas combinadas (u = 1) e a matriz de correlação. A maior contribuição para as correlações provém da curva de eficiência.

**TABELA 5.9 – Probabilidades de emissão γ por decaimento (×100) obtidas para o $^{67}$Ga e matriz de correlação.**

| Energia gama (keV) | Probabilidade por decaimento (×100) | Incerteza combinada (×100) | Matriz de Correlação (×1000) | | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 93,31 | 37,49 | 0,31 | 1000 | | | | | | | | |
| 184,58 | 20,83 | 0,16 | 315 | 1000 | | | | | | | |
| 208,95 | 2,361 | 0,019 | 210 | 809 | 1000 | | | | | | |
| 300,22 | 16,68 | 0,09 | 360 | 703 | 625 | 1000 | | | | | |
| 393,53 | 4,601 | 0,029 | 409 | 189 | 191 | 608 | 1000 | | | | |
| 494,17 | 0,0668 | 0,0007 | 488 | -112 | -68 | 496 | 935 | 1000 | | | |
| 703,11 | 0,01292 | 0,00022 | 424 | -42 | -40 | 295 | 672 | 838 | 1000 | | |
| 794,38 | 0,0527 | 0,0005 | 333 | 93 | 80 | 247 | 487 | 651 | 955 | 1000 | |
| 887,69 | 0,1484 | 0,0014 | 224 | 231 | 208 | 210 | 291 | 431 | 834 | 959 | 1000 |

A probabilidade da linha de 93 keV foi obtida a partir da área do dubleto 91/93 keV. As áreas de cada pico do dubleto foram determinadas pelo processo ilustrado na FIG. 5.10.

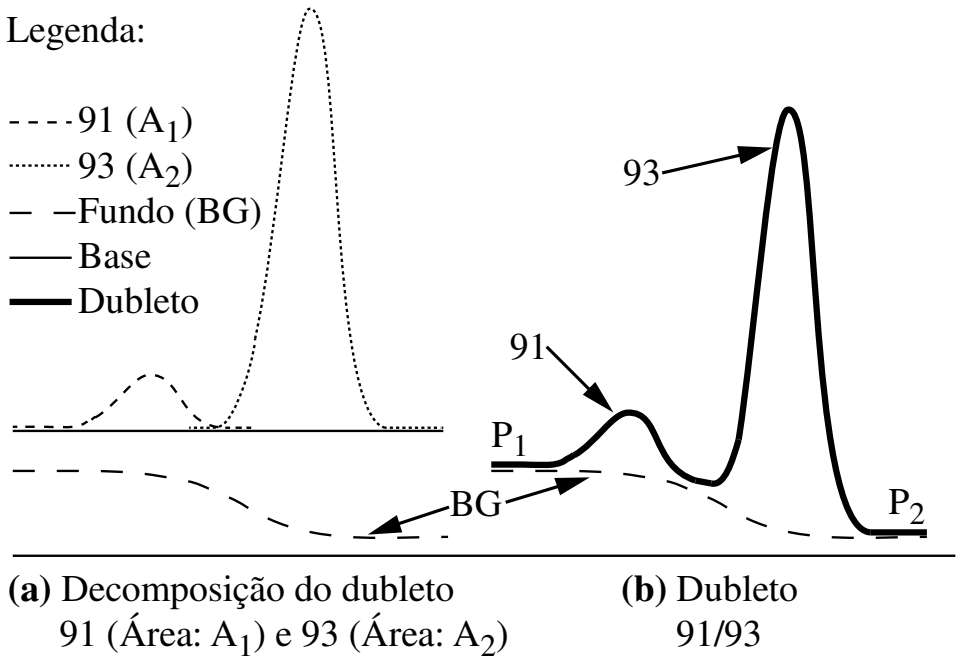



**FIGURA 5.10 – Processo de decomposição do dubleto γ 91/93 keV, por ajuste de duas gaussianas e um polinômio de grau três para BG.**

O processo de ajuste acima esquematizado foi realizado pelos seguintes passos:

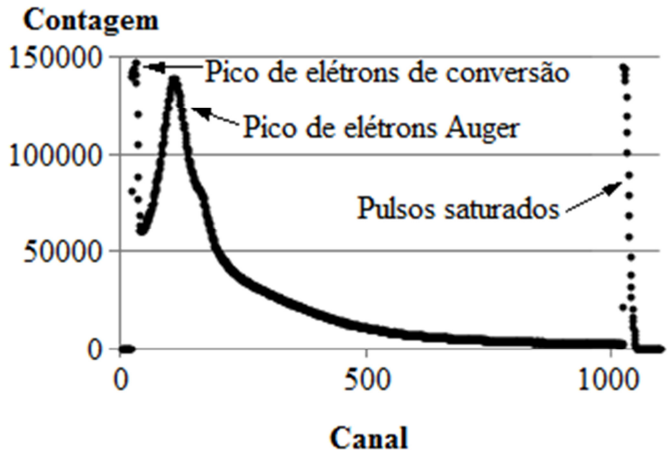
- Ajuste de um polinômio de grau três às contagens de BG (Origin 4.00), a partir das contagens dos patamares, à esquerda e à direita do dubleto, $P_1$ e $P_2$;
- Obtenção das contagens líquidas da área de dubleto, subtraindo-se, ponto a ponto, as contagens ajustadas para BG;
- Obtenção das áreas parciais dos picos do dubleto, $A_1$ e $A_2$, por ajuste (Origin 4.00) da superposição de duas gaussianas;
- Obtenção (ALPINO) da área total do dubleto, FIG. 5.10 (b): $A_T=A_1+A_2$; e das frações referentes a cada pico: $f_1=A_1/A_T$; $f_2=A_2/A_T$.

Para determinar as probabilidades de emissão γ utilizaram-se dados de alta resolução (HPGe), de modo a viabilizar o processo esquematizado na FIG. 5.10. Empregando-se um detector NaI(Tl), os pulsos do dubleto 91/93 são registrados em um único pico, conforme pode ser visto na FIG. 5.11 (b). Mesmo na análise em alta resolução, estes picos estão próximos ao limiar da resolução de HPGe. A probabilidade de emissão da linha de 93 keV resultou satisfatória. Embora a separação do dubleto tenha sido bem sucedida, as contagens da linha de 91 keV são muito afetadas por pulsos de 93 keV, cuja intensidade é cerca de doze vezes maior. Por esta razão, a probabilidade para a linha menos intensa foi obtida com uma incerteza insatisfatória, sendo então desconsiderada.

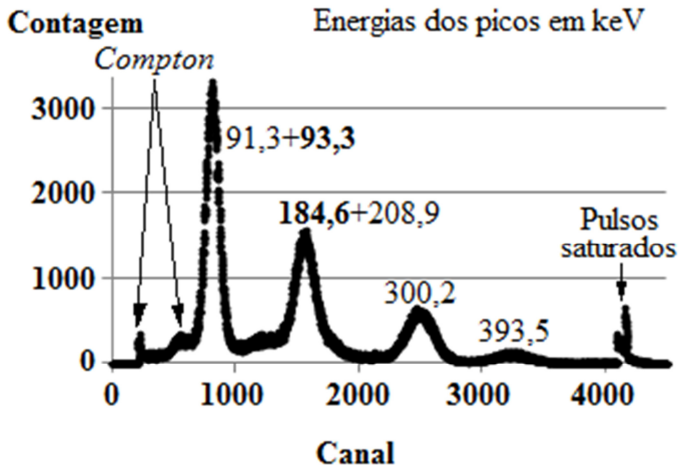
A TAB. 5.10 apresenta as probabilidades de emissão γ por decaimento obtidas para o $^{67}$Ga, comparadas aos valores da literatura [62, 67-70]. Há boa concordância com os demais autores, em particular com a recente avaliação realizada por Mougeot et al. (2011), com exceção à transição de 703,11 keV, menos intensa, que resultou 14% maior. Na maioria dos casos, as incertezas obtidas neste trabalho são menores do que as apresentadas na literatura. Estes resultados mostram que os graus de exatidão e de precisão obtidos com SCS/CAT são plenamente satisfatórios, comprovando a confiabilidade do novo sistema. A FIG. 5.11 mostra as distribuições de amplitudes típicas obtidas no processo de padronização do $^{67}$Ga.

**TABELA 5.10 – Probabilidades de emissão γ por decaimento (×100) obtidas para o $^{67}$Ga e comparadas a valores de literatura.**

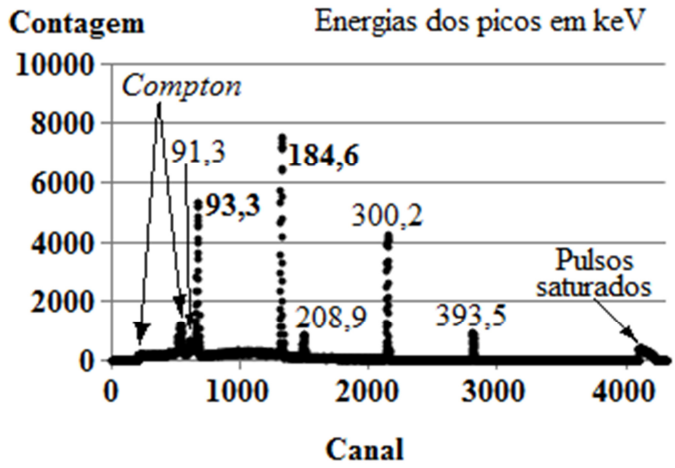
| Energia gama (keV) | Presente trabalho | Meyer 1990 | Yalçin et al. 2005 | Bobin et al. 2007 | Mougeot et al. 2011 |
|---|---|---|---|---|---|
| 93,31 | 37,49 (31) | 36,6 (14) | 38,8 (17) | 38,61 (35) | 38,1 (7) |
| 184,58 | 20,83 (16) | 21,7 (9) | 21,4 (9) | 21,13 (10) | 20,96 (44) |
| 208,95 | 2,361 (19) | 2,4 (1) | 2,46 (11) | 2,396 (13) | 2,37 (5) |
| 300,22 | 16,68 (9) | 16,6 (4) | 16,6 (7) | 16,74 (8) | 16,60 (37) |
| 393,53 | 4,601 (29) | 4,5 (1) | 4,6 (2) | 4,462 (25) | 4,59 (10) |
| 494,17 | 0,0668 (7) | 0,07 (1) | - | 0,0657 (33) | 0,0666 (29) |
| 703,11 | 0,01292 (22) | 0,010 (1) | - | - | 0,0113 (9) |
| 794,38 | 0,0527 (5) | 0,053 (3) | - | 0,0565 (24) | 0,0528 (17) |
| 887,69 | 0,1484 (14) | 0,149 (5) | - | 0,1522 (35) | 0,1492 (38) |




**(a)** Distribuição de contagens obtida para o contador proporcional.




**(b)** Distribuição de contagens obtida para o cintilador de iodeto de sódio.




**(c)** Distribuição de contagens obtida para o detector de germânio hiperpuro.

**FIGURA 5.11 – Espectros de amplitudes típicos, obtidos para o $^{67}$Ga com dados CAT.**

# 6 CONCLUSÕES

O presente trabalho apresenta a metodologia de coincidências com análise por *software* desenvolvida no LMN, para a padronização de radionuclídeos com decaimento complexo, por ramos distintos, como $\beta^-$ e captura eletrônica, ou com níveis de transição metaestáveis. Também se desenvolveu o programa *Coincidence Analyzing Task* – CAT –, que executa as tarefas essenciais de análise, integrando e viabilizando a utilização prática dos métodos elaborados. Grandezas importantes, relacionadas aos sistemas de medidas convencionais e à metodologia de coincidências, são configuradas no programa de análise (CAT): níveis de discriminação; tempo de resolução de coincidências; tempo-morto. Alguns resultados foram obtidos de análises de dados de detecção $\gamma$ de alta resolução em energia (HPGe), demonstrando-se a praticidade e flexibilidade de efetuar a discriminação de amplitudes por *software*, inclusive utilizando-se detectores com alta resolução em energia. Utilizaram-se tempos de resolução de coincidências de ±1 a ±200 μs e valores de tempo-morto entre 3 e 99 μs. Faixas mais amplas podem ser utilizadas. Em ensaios complementares realizados durante o desenvolvimento, chegou-se a configurar resolução de coincidências de ±2000 μs e tempo-morto de 1000 μs. O programa CAT inclui correções necessárias à determinação de atividade: tempo-morto e contagem de coincidências acidentais (espúrias), de acordo com formalismo de Cox-Isham; contagens de fundo e decaimento radioativo da amostra, durante a medida e para data de referência.

O trabalho inclui a aplicação prática com as padronizações do $^{152}$Eu e do $^{67}$Ga, conforme síntese apresentada a seguir.

A padronização do $^{152}$Eu foi considerada para validação da metodologia desenvolvida, determinando-se a atividade da amostra, conforme mostra a TAB. 5.3. Os resultados estão em acordo com valores obtidos por simulação de Monte Carlo e com valores obtidos anteriormente por laboratórios mundialmente reconhecidos, indicando que a metodologia de análise biparamétrica desenvolvida, utilizando recursos de *software*, atende aos requisitos propostos.

Na padronização realizada com cinco amostras de $^{67}$Ga foram determinadas: a meia-vida da transição metaestável de 93 keV; a atividade de cada amostra por normalização com Monte Carlo; a atividade específica média para a solução matriz; e a probabilidade de emissão $\gamma$ por decaimento para nove transições.

Os resultados obtidos para a meia-vida do nível metaestável do $^{67}$Ga indicam que as análises realizadas com o sistema proposto (SCS/CAT) em escala de tempo apresentam boa exatidão, sendo confiáveis para o propósito de contagem de coincidências por meio de algoritmos. Em suma, os métodos de *software* desenvolvidos para essa finalidade substituem com vantagens os módulos de coincidência utilizados em sistemas convencionais.

De modo geral, considerando-se as incertezas associadas, os resultados obtidos de probabilidade de emissão $\gamma$ por decaimento estão em excelente acordo com os valores de literatura. Como a exatidão desta medida depende diretamente daquela obtida na determinação de atividade, conclui-se que a padronização do $^{67}$Ga foi bem sucedida.

Em síntese, os resultados mostram que a meta de desenvolver uma metodologia de coincidências abrangente com análise por *software* foi atingido, incluindo-se a capacidade de padronizar radionuclídeos que decaem por ramos distintos e com níveis de transição metaestáveis, uma contribuição ***original*** deste trabalho. A aplicação prática, com suporte do programa CAT e de outros aplicativos, inclui a validação do sistema, obtida por meio da padronização do $^{152}$Eu, que decai, essencialmente, por $\beta^-$ e EC. A metodologia para a padronização de radionuclídeos com níveis metaestáveis foi desenvolvida a partir de dados obtidos com amostras de $^{67}$Ga, cuja transição de 93 keV apresenta uma meia-vida de 9,0 $\mu$s.

Como contribuição adicional deste trabalho, foram realizadas medidas simultâneas com dois detectores $\gamma$, disponíveis no arranjo de detecção #1 do LMN. Anteriormente, as medidas efetuadas com este arranjo utilizavam o sinal de apenas um detector, NaI(Tl) ou HPGe, optando-se, conforme o caso, por maior eficiência ou maior resolução energética.

Doravante, os sinais dos três detectores do arranjo #1 podem ser digitalizados e registrados simultaneamente, de modo a possibilitar a realização de análises em alta ou baixa resolução de energia, ou, ainda, a combinação destas modalidades. As análises realizadas para determinação da meia-vida da transição de 93 keV do $^{67}$Ga demonstram esta capacidade.

Para finalizar, pode-se afirmar que o LMN dispõe de um sistema com características atuais, prático e flexível, para padronização de radionuclídeos. O potencial para desenvolvimento de métodos e algoritmos é significativo, e muitas aplicações práticas novas podem ser idealizadas. Os diferentes métodos para discriminação de pulsos da via $4\pi\beta$ desenvolvidos e utilizados neste trabalho, SAD e SAD modificado, representam este potencial evolutivo. Conforme a necessidade, podem-se adotar sistemas de *hardware* com maior capacidade, por exemplo, com taxas de amostragem mais altas, de modo a permitir a utilização de detectores $4\pi\beta$ rápidos (cintiladores líquidos ou plásticos), para a medida de taxas de desintegração maiores.

Deste modo, entre os aperfeiçoamentos previstos para trabalhos futuros podem-se citar, para metodologia e programa CAT: a criação de algoritmo para discriminação eletrônica capaz de separar as contagens de elétrons coincidentes e não coincidentes; sedimentar as estruturas internas de classes e hierarquias, incluindo as de uso geral, disponibilizadas em bibliotecas; criar bancos de dados de radionuclídeos, amostras e sistemas de medidas; acrescentar funcionalidades, de modo a reduzir a dependência de outros programas (planilhas, tabelas, gráficos e ajustes); elaborar uma interface gráfica de usuário (GUI), utilizando-se programação *multithread* (múltiplas linhas de execução paralela); para o sistema de aquisição: adotar estratégia de multiarquivos de dados, alterando-se seu formato, de ASCII (texto) para binário, para a diminuição do tempo de transferência de dados, durante a aquisição; utilizar transferência intermediária de dados à memória (*buffer*), evitando-se o envio direto de informações às unidades de disco (muito mais lentas) durante a aquisição e ampliando-se o limite mensurável de atividade; implantação de *hardware* com taxas de amostragem mais altas e utilização de plataformas que operam com tecnologia de tempo real (*real-time computing* – RTC).

## ANEXO A – Programa de Aquisição de Dados de SCS

O programa de aquisição de SCS foi desenvolvido em LabVIEW [32, 38], dispondo de um painel de controle, mostrado na FIG. A1, que disponibiliza objetos para configuração da placa PCI-6132, controle da medida e visualização de informações. Esta versão configura três dos quatro canais de entrada disponíveis na PCI-6132. Os campos deste painel de controle são:

- Channel Parameters: configuração de entradas analógicas (escala de 0 a 10 V);
- Timing Parameters: configuração da frequência e número de amostragens;
- Trigger Parameters: ajuste dos níveis de corte de ruído (V);
- Measurement Time: ajuste e visualização do tempo de aquisição (medida);
- Botão com seta branca: controle para início da aquisição;
- Botão STOP: controle para interrupção de aquisição (normalmente, a aquisição termina automaticamente após tempo ajustado em Input Time).

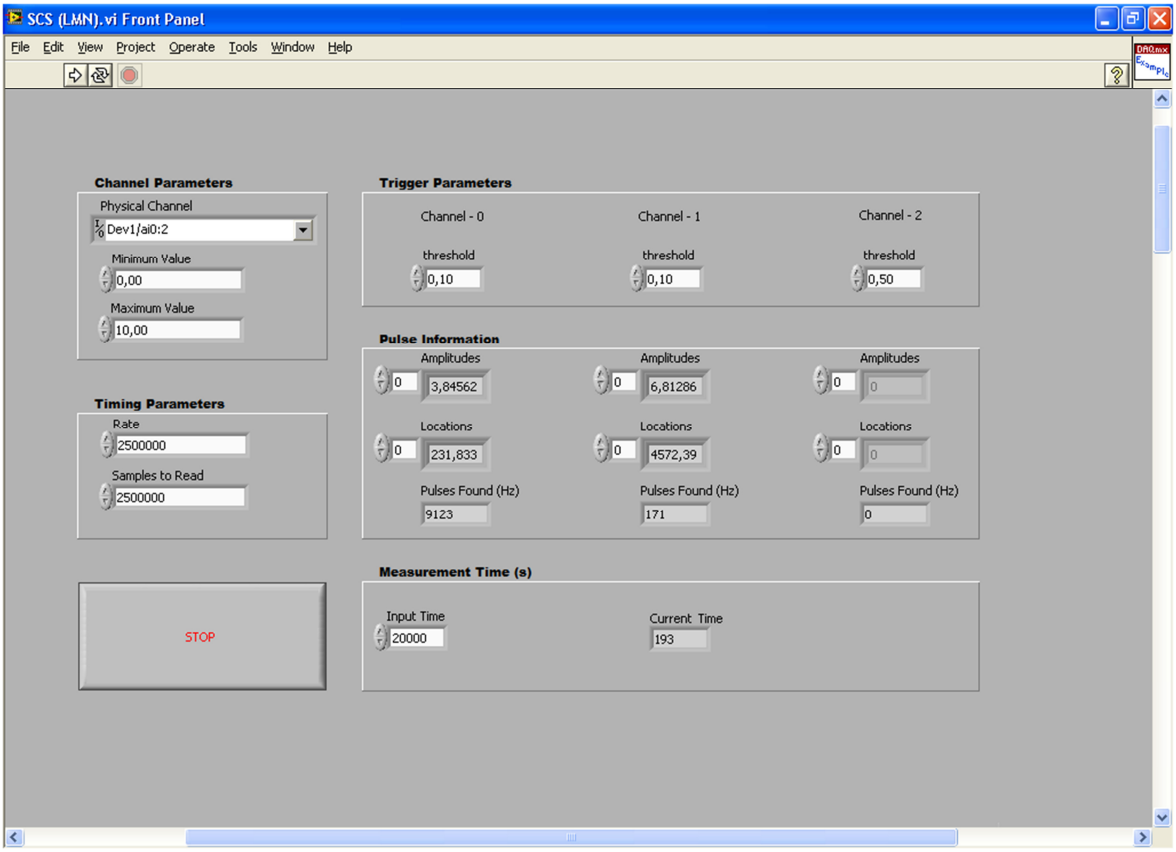



**FIGURA A1 – Painel de controle do programa de aquisição de SCS (LabVIEW).**

O programa de aquisição é realizado pelo diagrama de blocos da FIG. A2.

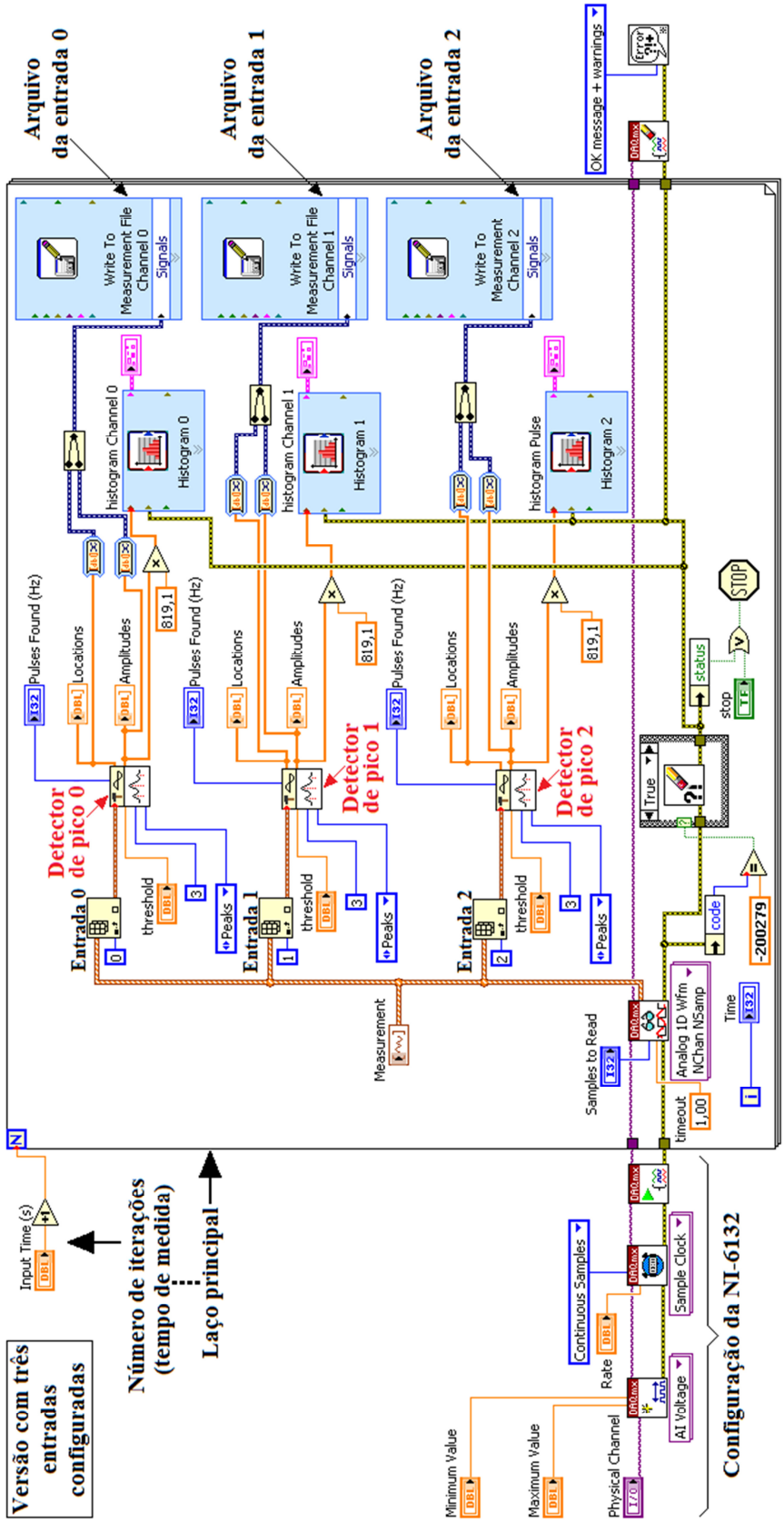



**FIGURA A2 – Diagrama em blocos do programa de aquisição de SCS (LabVIEW).**

## ANEXO B – Programação OOP e Simbologia UML dos Diagramas de Classes

A programação OOP baseia-se na criação de classes, estruturas que definem categorias de objetos, como entidades dotadas de atributos e comportamentos semelhantes. Podem-se definir conjuntos de classes relacionadas, sendo que o programa CAT utiliza as relações de herança e de associação, descritas neste anexo, e cuja simbologia UML [60], utilizada para modelagem, é apresentada na FIG. A.3.

A relação de herança (***é um***), derivação ou especialização, é estabelecida entre uma classe base (classe mãe, ou superclasse) e suas derivadas (classes filhas), que herdam os atributos e comportamentos da primeira. Um objeto da classe filha (ou neta: trata-se de relacionamento transitivo) também ***é um*** objeto da classe mãe.

Uma associação estabelece uma dependência entre classes, entre o ***todo*** e seu ***conteúdo***. A agregação é uma relação fraca, em que uma classe ***tem*** ou ***usa*** um ou mais objetos de outra classe, e os objetos ***conteúdo*** sobrevivem à destruição do ***todo***. A composição é similar à agregação, porém mais forte, pois a destruição do ***todo*** implica na destruição do ***conteúdo***.

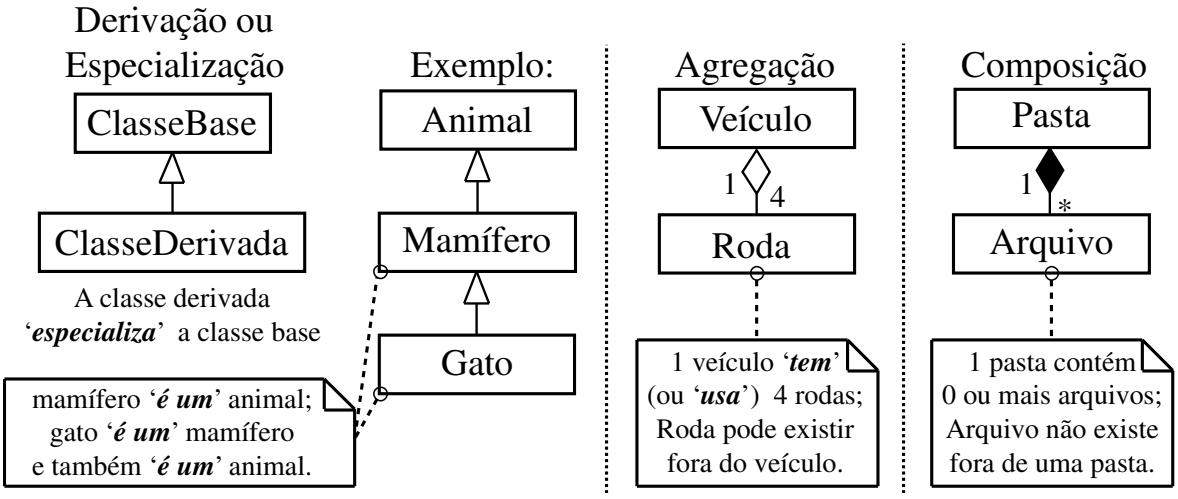



**FIGURA A.3 – Simbologia UML adotada nos diagramas de classes, para as relações de especialização, agregação e composição.**

# GLOSSÁRIO

Esta seção estabelece a nomenclatura de temos e expressões utilizadas neste trabalho, incluindo expressões reduzidas (abreviaturas), visando uma leitura mais concisa. A primeira aparição de uma redução no texto é acompanhada da respectiva expressão completa. Eventualmente, para maior clareza, uma expressão completa pode ser utilizada.

| | |
|---|---|
| **Altura** | Altura de Pulso: Amplitude ou valor máximo de um pulso. |
| **Amostra** | Amostra ou Fonte Radioativa: qualquer estrutura (frasco, ampola ou recipiente, película, lâmina, ou outras) que acondicione certa quantidade de matéria (sal ou solução, gel, sólido) contendo o(s) radionuclídeo(s), alvo de uma medida. |
| **Análise** | Fase da medida na qual se efetua o processamento das informações registradas e cálculos necessários à obtenção de resultados. |
| **Aplicativo** | Veja Programa. |
| **Aquisição** | Fase da medida em que se registram e armazenam informações obtidas a partir dos sinais de detecção, como a contagem de pulsos, tensões de amostragem ou altura dos pulsos, instantes, e outras grandezas. |
| **Arranjo Nuclear** | Conjunto de detectores utilizado em um sistema de medidas nucleares, incluindo os módulos eletrônicos necessários à sua polarização e à amplificação de sinais. |
| **Atividade** | Atividade de uma fonte ou amostra radioativa. |
| **Atributo** | Dado Membro de uma classe, que pode ser constituído por variável primitiva ou por um objeto de uma dada classe; atributos definem as características de um objeto, como, por exemplo, cor, peso, marca, modelo de um veículo; elementos que compõem um objeto, por exemplo, o motor e as rodas de um veículo. |
| ***Auger*** | Elétrons *Auger*: elétrons orbitais emitidos em lugar dos Raios X, originados de vacâncias seguidas de rearranjo da eletrosfera. |

| | |
|---|---|
| **Canal** | (a) Intervalo definido (faixa ou classe de energias, tempos, contagens) em um espectro ou histograma, representado por um número inteiro (índice);<br>(b) Entrada ou saída de sinal analógico ou digital em um circuito eletrônico; banda de frequências. |
| **Classe** | Estrutura OOP (*class*) que define um modelo para variáveis complexas de um programa (v. Objeto); várias classes padrão podem ser fornecidas por uma linguagem, em bibliotecas padrão (v. STL), e definidas pelo programador (UDT) em adição às variáveis primitivas (preexistentes na linguagem). |
| **Comportamento** | Característica ativa de um objeto, definida por uma função membro, como, por exemplo, acionar/desligar motor, acelerar, frear e direcionar um veículo. |
| **Dado Membro** | Veja Atributo. |
| **Decaimento** | Decaimento Radioativo: processo em que um núcleo atômico excitado perde energia, em busca do estado fundamental (energeticamente estável), por meio de fenômenos de emissão de partículas eletricamente carregadas ou por captura eletrônica, e por transição entre níveis de energia. |
| **Detector** | Detector de Radiação: dispositivo que converte a energia depositada em seu volume sensível em impulsos elétricos, de corrente, carga ou tensão, que podem ser processados e registrados, com o auxílio de um sistema de medidas. |
| **Emissão** | Ejeção de energia, em forma de partícula neutra ou carregada (energia cinética), ou fóton (energia eletromagnética). |
| **Espectro** | Distribuição de energias, tempos e outras grandezas, representada graficamente por um histograma. |
| **Estado** | Estado ou Nível Energético em que se encontra o núcleo atômico, antes ou após o decaimento, podendo ser energeticamente excitado ou estável (Fundamental). |
| **Excitado** | Em um estado energético instável. |
| **Filho** | Elemento químico (nuclídeo) resultante de um processo de decaimento. |

| | |
|---|---|
| **Fóton** | Partícula elementar com massa e carga elétrica nulas, ou quanta de energia eletromagnética, incluindo a luz, os raios X e gama. |
| **Função Membro** | Função de uma classe que define um comportamento do objeto, ou permite o acesso aos dados membro. |
| **Fundamental** | Estado final de energia, estável, de um decaimento. |
| ***Hardware*** | Designação em inglês (Ferragem) para circuitos eletrônicos, principalmente em computadores. |
| **Impulso** | Veja Pulso. |
| **Instância** | Veja Objeto. |
| **Ionização** | Ejeção ou absorção de elétrons por um átomo, com desestabilização de carga elétrica (formação de íons): elétron livre, cátion ou lacuna (em meios semicondutores). |
| **Lacuna** | Átomo com carência de elétrons em uma estrutura semicondutora, considerado como portador de corrente com carga positiva, equivalente a um elétron. |
| **Linguagem** | Conjunto de expressões e palavras chave, com sintaxe e estrutura semântica bem definidas, utilizada para elaboração de código fonte, no desenvolvimento de *software*. |
| **Medida** | Processo completo de aquisição e análise, para a padronização de radionuclídeos pelo método de coincidência. |
| **Metaestável** | Estado Metaestável (isomérico): estado excitado no qual a transição ao nível de menor energia ocorre com retardo, de modo aleatório, e com uma dada probabilidade. |
| **Módulo** | Circuito eletrônico modular utilizado em medidas nucleares. |
| **Nuclídeo** | Átomo ou elemento químico caracterizado por seu número Atômico, número de massa e estado energético. |
| **Objeto** | Entidade complexa de um programa (variável) que reúne atributos e comportamentos definidos em sua classe. |
| **Padronização** | Processo de medida para a obtenção da atividade de uma amostra composta por dado radionuclídeo. |
| **Pai** | Elemento químico (radionuclídeo) que dá origem ao filho em um processo de decaimento. |

| | |
|---|---|
| **Pico** | (a) Pico de Absorção Total: região de um espectro, ou distribuição de energias, correspondente ao registro dos pulsos de detecção que depositaram toda a sua energia no detector; o pico, portanto, representa a energia de uma transição específica (normalmente gama);<br>(b) Ponto de máximo valor instantâneo de um pulso, de tensão, corrente ou carga; instante de pico: instante em que ocorre o valor máximo; valor de pico: altura, amplitude máxima. |
| **Primária** | Partícula carregada ou fóton de origem nuclear, produzida diretamente em um processo de decaimento, como as partículas $\beta$ e os fótons $\gamma$, Carregam energias relativamente elevadas, dada sua origem nuclear. |
| **Programa** | Aplicativo ou código computacional com funcionalidade específica. |
| **Pulso** | Pulso de detecção: sinal de impulso elétrico analógico, proveniente de um detector e que corresponde à detecção de partículas ou fótons; sua forma ou altura guarda a informação da energia depositada. |
| **Pulso Lógico** | Pulso Digital, normalmente usado como controle (início, fim, pronto, requisição, escrita, leitura, e outros comandos). |
| **Radiação** | Partícula atômica, carregada ou neutra, ou fóton emitido, originado de decaimento ou produzida artificialmente. |
| **Radioativo** | Átomo ou material contendo átomos energeticamente instáveis. |
| **Radionuclídeo** | Nuclídeo Radioativo. |
| **Secundária** | Partícula carregada ou fóton com origem na eletrosfera, como os elétrons *Auger* e os fótons X característicos, resultantes de um processo de decaimento seguido de vacâncias na eletrosfera; carregam energias relativamente baixas, em razão de sua origem orbital. |
| **Sinal** | Grandeza elétrica (analógica ou digital; fixa ou variável) que se pode medir ou processar. |

| | |
|---|---|
| **Sistema** | Sistema de Medida de Coincidências: conjunto completo de equipamentos e programas, para medidas baseadas na metodologia de coincidências. |
| **Sistema Convencional** | Sistema de Medida de Coincidências que utiliza módulos eletrônicos convencionais, como discriminadores, contadores, ADC, TAC, MCA, portas e circuitos de atraso de pulso. |
| **Sistema Digital** | Sistema de Medida de Coincidências que digitaliza os pulsos de detecção para análise posterior, por *software*. |
| **Sistema de Detecção** | Veja Arranjo Nuclear. |
| ***Software*** | Termo genérico para especificar qualquer tipo de código computacional: programas, sistemas operacionais, ferramentas auxiliares, e outros. |
| **Tipo** | Categoria de uma variável (informação) de programa, como:<br>• números: inteiros, ponto flutuante de precisão simples ou dupla;<br>• caráter alfanumérico (símbolo);<br>• booleanos (Verdadeiro: *true*; Falso: *false*);<br>• cadeias (*arrays*) de caracteres alfanuméricos (*strings*);<br>• definidos por usuários (UDT). |
| **Transição** | Fenômeno em que o núcleo muda de um estado a outro de menor energia. |
| **Transmutação** | Idem, mas com alteração do número atômico (Z). |
| **Vacância** | Carência eletrônica em um orbital atômico causada por excitação ou ionização. |
| **Variável** | Entidade, em programas computacionais, que representa uma grandeza, quantidade ou qualquer informação alfanumérica, e que ocupa uma região da memória volátil (RAM) da máquina. Em OOP, uma variável pode representar um objeto ou instância de uma classe. |
| **Via** | Uma das três seções de um sistema: $\beta$, $\gamma$ e coincidências; qualquer etapa ou caminho de fluxo de dados em um circuito. |

## Referências Bibliográficas


**[1]** BAERG, A. P., Measurement of Radioactivity Disintegration Rate by the Coincidence Method, *Metrologia*, 2 (1), 23-32, 1966.

**[2]** BAERG, A. P., Absolute Measurement of Radioactivity, *Metrologia*, 3 (4), 105-108, 1967.

**[3]** BAERG, A. P., The Efficiency Extrapolation Method in Coincidence Counting, *Nuclear Instruments and Methods,* 112, 143-150, 1973.

**[4]** CAMPION, P. J., The Standardization of Radioisotopes by Beta-Gamma Coincidence Method Using High Efficiency Detectors, *Int. Journ. Appl.Radiat. Isot*. 4, 232-248, 1959.

**[5]** GANDY, A., Mesure Absolute de l'Activité des Radionucléides par la Méthode des Coincidences Beta-Gamma à l'Aide de Détecteurs de Grand Efficacité – Étude des coincidences instrumentales, *Int. Journ. Appl. Radiat. Isot.* 11, 75, 1961.

**[6]** GANDY, A., Mesure Absolute de l'Activité des Radionucléides par la Méthode des Coincidences Beta-Gamma à l'Aide de Détecteurs de Grand Efficacité – Corretions de Temps Morts, *Int. Journ. Appl. Radiat. Isot.* 13, 501, 1962.

**[7]** HOUTHERMANS, H., MIGUEL, M., $4\pi\beta$-$\gamma$ Coincidence Counting for the Calibration of Nuclides with Complex Decay Schemes, *Int. Journ. Appl. Radiat. Isot.* 13, 137-142, 1962.

**[8]** KAWADA, Y., Extended Applications and Improvement of the $4\pi\beta$-$\gamma$ Coincidence Method in the Standardization of Radionuclides, *Res, of ETL,* Japan, ETL-730, 1972.

**[9]** MOURA, L. P., Método de Coincidência Generalizado para a Medida Absoluta da Atividade de Radionuclídeos – Aplicação da Determinação do Coeficiente de Conversão Interna da Transição de 279 keV do $^{203}$Tl, *Tese de Doutorado apresentada à Universidade de Campinas*, 1969.

**[10]** TAYLOR, J. G. V., The Total Internal Conversion Coefficient of the 279 keV Transition Following the Decay of $^{203}$Hg as Measured by a new Coincidence Method, *Canad. Journ. Phys.* 40 (4), 383, 1962.

**[11]** BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., Coincidence System for Standardization of Radionuclides Using a 4π Plastic Scintillator Detector, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 58, 239-244, 2003.

**[12]** DIAS, M. S., PIUVEZAM FILHO, H., BACCARELLI, A. M., TAKEDA, M. N., KOSKINAS, M. F., Monte Carlo Simulation of β-γ Coincidence System Using Plastic Scintillators in 4π Geometry, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Elsevier, A 580, 380-383, 2007.

**[13]** DIAS, M. S., PIUVEZAM FILHO, H., KOSKINAS, M. F., Optimization of a Coincidence System Using Plastic Scintillators in 4π Geometry, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 66, 905-908, 2008.

**[14]** BACCARELLI, A. M., DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., BRANCACCIO, F., Standardization of $^{18}$F by Means of 4π(PS)β-γ Plastic Scintillator Coincidence System, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 55, No, 3, 1767-1773, 2008.

**[15]** DIAS, M. S., Calibração de um Sistema de Câmara de Ionização de Poço 4π-γ para Medidas de Atividade de Radionuclídeos, *Dissertação de Mestrado apresentado à Escola Politécnica da Universidade de São Paulo*, 1978.

**[16]** FONSECA, K. A., Medida Absoluta da Atividade e Determinação da Taxa de Emissão Gama por Decaimento do $^{126}$I, *Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,* 1997.

**[17]** KOSKINAS, M. F., Desenvolvimento de um Sistema de Coincidência para a Medida Absoluta da Atividade de Radionuclídeos Empregando Detectores de Barreira de Superfície, *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,* 1988.

**[18]** BRANCACCIO, F., Automatização de um Sistema de Medidas de Correntes Produzidas por Câmaras de Ionização e Aplicação na Calibração do $^{18}$F e $^{153}$Sm, *Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,* 2002.

**[19]** BRANCACCIO, F., DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., Automatic System for Ionization Chamber Current Measurements, *Int. Journ. Appl. Radiat. Isot.* 61, 1339-1342, Elsevier, 2004.

**[20]** MULLER, J. W. and RYTZ, A., Report on the International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of $^{60}$Co, *BIPM*, setembro 1967.

**[21]** RATEL, G., Activity Measurement of a $^{75}$Se Solution in the Frame of an International Comparison (junho 1992), *CCEMRI(II)/93-14*, maio 1993.

**[22]** RATEL, G., International Comparison of Activity Measurement of a Solution of $^{109}$Cd, *CCEMRI(II)/87-7*, maio 1987.

**[23]** RATEL, G., International Comparison of Activity Measurements of a Solution of $^{125}$I, *CCEMRI(II)/89-2*, abril 1989.

**[24]** RYTS, A., Report on the International Comparison of Activity Measurement of a Solution of $^{139}$Ce, *Rapport BIPM – 77/4*, 1977.

**[25]** RYTZ, A., International Comparison of Activity Measurements of a Solution of $^{133}$Ba, *Rapport BIPM – 85/11*, novembro 1985.

**[26]** RATEL, G., Results of the International Comparison of Activity Measurements of $^{152}$Eu, *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, 2001.

**[27]** KOSKINAS, M. F., SILVA, E. A., YAMAZAKI, I. M., DIAS, M. S., Disintegration Rate Measurement of $^{182}$Ta, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 66, 934-936, 2008.

**[28]** ATTIE, M. R. P., KOSKINAS, M. F., DIAS, M. S., FONSECA, K. A., Absolute Disintegration Rate Measurements of Ga-67, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, Vol. 49, Nº 9-11, 1175-1177, 1998.

**[29]** BUCKMAN, S. M.; IUS, D., Digital Coincidence Counting, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Elsevier, A 369, 368-374, 1996.

**[30]** The Ansto/NPL Digital Coincidence Counting (DCC) System, **www.npl.co.uk/ionising-radiation/radioactivity/research/**. Acesso: março 2013.

**[31]** HAVELKA, M.; AUERBACH, P.; SOCHOROVÁ, J., Software Coincidence Counting, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 56, 265-268, 2002.

**[32]** DE TOLEDO, F., BRANCACCIO, F., LAPOLLI, A., DIAS, M. S., Design of Electronic System with Simultaneous Registering of Pulse and Event Time Applied to 4πβ-γ Coincidence Method, *Proceedings of the IEEE 2008 Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference and 16th Room Temperature Semiconductor Detector Workshop* 19 - 25, Dresden, Germany, em CDROM, outubro 2008.

**[33]** KNOLL, G. F. Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, quarta edição, 2010.

**[34]** DIAS, M. S., TAKEDA, M. N., KOSKINAS, M. F., Application of Monte Carlo Simulation to the Prediction of Extrapolation Curves in the Coincidence Technique, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 64, 1186-1192, 2006.

**[35]** FONSECA, K. A., Desenvolvimento de Métodos de Medida de Atividade Empregando Sistemas de Coincidência para Radionuclídeos que Desintegram pela Dupla Emissão $\beta^-$-$\beta^+$/Captura Eletrônica – Aplicação na Padronização do $^{192}$Ir, $^{152}$Eu e $^{186}$Re, *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,* 2002.

**[36]** KOSKINAS, M. F., FONSECA, K. A., DIAS, M. S., Disintegration Rate Measurement of a $^{152}$Eu Solution, *Applied Radiation and Isotopes*, Elsevier, 56, 441-445, 2002.

**[37]** KURAMOTO, R. Y. R., Desenvolvimento de uma Metodologia Baseada no Modelo de Duas-Regiões e em Técnicas de Análise de Ruído Microscópico para a Medida Absoluta dos Parâmetros Cinéticos $\beta_{eff}$, $\Lambda$ e $\beta_{eff}/\Lambda$ do Reator IPEN/MB-01, *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares*, 2007.

**[38]** National Instruments: **www.ni.com/manuals/371231.pdf**. Acesso: março 2013.

**[39]** DIAS, M. S., SCTAC, Código para Cálculo de Atividade Baseado em Medidas de Contagem de Coincidências por *Software*, Relatório interno, IPEN-CNEN/SP, 2010.

**[40]** DIAS, M. S., CONTAC9, Código para Cálculo de Atividades do Sistema de Coincidências TAC, Relatório interno, LMN (IPEN), 2001.

**[41]** DIAS, M. S., TAKEDA, M. N., KOSHINAS, M. F., Cascade Summing Corrections for REGe Spectrometers by the Monte Carlo Method, *Appl. Radiat. and Isot.* 56, 105-109, 2002.

**[42]** DIAS, M. S., LOGFIT, Código para Ajustes Logarítmicos, Relatório interno, LMN (IPEN), 1997.

**[43]** DIAS, M. S., LINFIT, Código para Ajustes Lineares, Relatório interno, LMN (IPEN), 1999.

**[44]** DIAS, M. S., ALPINO, Código para Obtenção de Atividades e Eficiências de Contagem com Espectrômetro REGe, Relatório interno, LMN (IPEN), 2000.

**[45]** DIAS, M. S., DILUIP7, Código para Cálculo de Atividade, com o Sistema de Coincidências, Convencional com Contadores, Relatório interno, LMN (IPEN), 2000.

**[46]** TAKEDA, M. N., Aplicação do Método de Monte Carlo no Estudo da Padronização de Radionuclídeos com Esquema de Desintegração Complexos em Sistema de Coincidências 4πβ-γ, *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares,* 2006.

**[47]** DIAS, M. S., TAKEDA, M. N., DE TOLEDO, F., BRANCACCIO, F., TONGU, M. L. O., KOSKINAS, M. F., Improvements in the Monte Carlo Code for Simulating 4πβ(PC)-γ Coincidence System Measurements, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Elsevier, NIMA-D-12-00550R1, 2013.

**[48]** ORNL, Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP5, RSICC Computer Code Collection, *Oak Ridge National Laboratory*, 2006.

**[49]** Microcal Origin, Version: 4.00, Copyright 1991-1995 Microcal Software, Inc.

**[50]** Wolfram Mathematica 9: **www.wolfram.com/mathematica/**. Acesso: abril 2013.

**[51]** STROUSTRUP, B., The C++ Programming Language Special Edition, Addison-Wesley, *Copyright 2000 by AT&T*, 18ª impressão, abril 2009.

**[52]** DEITEL, H. M., DEITEL, P. J., C++ Como Programar (tradução do original: *C++ How to Program*), Bookman, *Copyright 2001*, 3ª edição (Brasil), 2002.

**[53]** McCONNELL, S., Code Complete, A Practical Handbook of Software Construction, Microsoft Press, *Copyright 2004 by Steven C. McConnell*, 2ª edição, 2004.

**[54]** LAKOS, J., Large-Scale C++ Software Design, Addison-Wesley, *Copyright 1996 by Addison-Wesley*, 19ª impressão, maio 2009.

**[55]** GAMMA, E., HELM, R., JOHNSON, R., VLISSIDES, J., Design Patterns Elements of Reusable Object-Oriented Software, Addison-Wesley, *Copyright 1995 by Addison-Wesley*, 38ª impressão, julho 2010.

**[56]** The Dev-C++ Resource Site: **bloodshed.net/dev/devcpp.html**. Acesso: março 2013.

**[57]** Qt, sítio oficial: **qt.digia.com/Product/Developer-Tools/**. Acesso: março 2013.

**[58]** COX, D. R., ISHAM, V., A Bivariate Point Process Connected With Electronic Counters, *Proc. R. Soc.* A 356, 149-160, 1977.

**[59]** SMITH, D., Some Developments in the Cox-Isham Theory of Coincidence Corrections, Including the Extension to the Computer-Discrimination Method, *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 38, N° 10, 813-821, 1987.

**[60]** UML, sítio oficial: **www.uml.org/**. Acesso: março 2013.

**[61]** BÉ, M.-M., CHISTÉ, V., DULIEU, C., BROWNE, E., CHECHEV, V., KUZMENKO, N., HELMER, R., NICHOLS, A., SCHÖNFELD, E., DERSCH, R., Table of Radionuclides (Vol. 2 – A = 151 to 242) – BIPM – *Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 SÈVRES*, 2004.

**[62]** MOUGEOT, X., CHECHEV, V. P., Table de Radionucléides – LNHB – *Laboratoire National Henri Becquerel Recommendent Data*, 2011: **www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm**. Acesso: abril 2013.

**[63]** Agilent 33500 Series 30 MHz Function / Arbitrary Waveform Generator, Manual e Guia de Usuário, Publicação Número 33520-90001, Edição 1, junho 2010.

**[64]** HWANG, H. Y., LEE, C. B., PARK, T. S., KIM, H. J., A new Method for Isomer Lifetime Measurement, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* A, 383, 447-450, 1996.

**[65]** ROODBERGEN, S., VISSER, H., MOLENDIJK, W., BEDET, H. S., VERHEUL, H., Transition Probabilities in the Ni-Zn Region, *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, A 275, 45-50, 1975.

**[66]** LEWIS, V. E., SMITH, D., WILLIAMS, A., Correlation Counting Applied to the Determination of Absolute Disintegration Rates for Nuclides with Delayed States, *Metrologia 9*, 14-20, 1973.

**[67]** MEYER, R. A., Fizika (Zagreb) 22, 153, 1990. Citado por: MOUGEOT, X., CHECHEV, V. P., LNHB – *Laboratoire National Henri Becquerel Recommended Data* – Table de Radionucléides –, $^{67}$Ga 2011: **http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm**. Acesso: abril 2013.

**[68]** YALÇIN, P., KURUCU, Y., Emission Probabilities of K X- and γ-rays following $^{51}$Cr and $^{67}$Ga decay, *Appl. Radiat. Isot.* 62, 63-67, 2005.

**[69]** BOBIN, C., BOUCHARD, J., HAMON, C., IROULART, M. G., PLAGNARD, J., Standardization of $^{67}$Ga using a 4π(LS)β-γ Anti-coincidence System, *Appl. Radiat. Isot.* 65, 757-763, 2007.

**[70]** MOUGEOT, X., CHECHEV, V. P., $^{67}$Ga – Comments on evaluation of decay data, LNHB – *Laboratoire National Henri Becquerel*, 2011.