INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**Determinação da taxa de desintegração e das
probabilidades de emissão gama por decaimento do
I-123**

Karoline Cianci Gishitomi

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

Orientadora:

Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas

São Paulo

2012

*Dedico este trabalho
aos meus pais, Shoko e Claudete, às
minhas irmãs, Nathalia e Mariana.
Dedico também aos meus amigos
verdadeiros.*

*A eles expresso todo
meu amor.*

“Há pessoas que transformam o sol numa simples mancha amarela, mas há também aquelas que fazem de uma simples mancha amarela o próprio sol.”

Pablo Picasso

AGRADECIMENTOS

Agradeço à orientadora Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas, pela oportunidade oferecida, compreensão nos momentos de dificuldade, pela paciência, pela ajuda e pelo exemplo de orientadora e pessoa.

Ao Prof. Dr. Mauro da Silva Dias, pela contribuição a este trabalho, sob a forma de preciosas sugestões e discussões desde o início do projeto até sua concretização.

À Msc. Ione M. Yamazaki, pela ajuda no laboratório, com a confecção dos filmes.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, por ter disponibilizado as instalações e a infra-estrutura do Centro de Reator de Pesquisas, CRPq, para a realização deste trabalho.

Aos meus amigos, Bruno, Túlio e Iara, que pude conhecer após ingressar à faculdade, e que continuaram me ajudando e apoiando ao longo de todos esses anos.

Aos colegas e amigos que pude conhecer após ingressar ao Mestrado, que contribuíram não somente nas disciplinas, mas como na realização deste trabalho. Agradecimento especial a Andréia e a Tatiane.

Aos meus amigos, que sempre estiveram presentes em toda a minha vida, e aos amigos que surgiram ao longo dos anos, que sempre me apoiaram, me ajudaram em todos os momentos, e que são muito importantes para mim: Aline, Fernando, Marília, Marina e Maêva.

E finalmente, à minha família, aos meus pais, Shoko Gishitomi e Claudete da S. Gishitomi, e as minhas irmãs, Nathalia C. Gishitomi e Mariana C. Gishitomi, pela ajuda, compreensão, pelo carinho e apoio durante toda minha vida. Tudo o que eu sou eu devo a vocês.

DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO E DAS PROBABILIDADES DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO DO ^{123}I

Karoline Cianci Gishitomi

RESUMO

Neste trabalho foi desenvolvido o método de padronização do ^{123}I em sistema de coincidências $4\pi(\text{X,A})-\gamma$. O ^{123}I foi produzido no cíclotron Cyclone-30 do IPEN CNEN/SP, por meio da irradiação do ^{124}Xe . O ^{123}I decai com uma meia vida de 13,22 horas pelo processo de captura eletrônica seguido da emissão de radiação gama. Foi aplicada a técnica de extrapolação linear da eficiência para determinação da atividade e para determinação do coeficiente de conversão interna total do nível de 159 keV, obtido a partir da inclinação da curva de extrapolação. A curva de extrapolação experimental foi comparada com a simulação de Monte Carlo, executada pelo código ESQUEMA. As fontes radioativas foram também medidas em um sistema de espectrometria de HPGe, a fim de determinar a probabilidade de emissão gama por decaimento para várias transições gama. Todas as incertezas envolvidas e suas correlações foram analisadas aplicando a metodologia de matriz de covariância e os parâmetros medidos foram comparados com os da literatura.

DISINTEGRATION RATE AND GAMMA RAY EMISSION PROBABILITY PER DECAY MEASUREMENT OF ^{123}I

Karoline Cianci Gishitomi

ABSTRACT

This paper describes the development of the ^{123}I standardization method in a $4\pi(\text{X}, \text{A})$ - γ coincidence system. The ^{123}I was produced in the ciclotron-30 of IPEN CNEN / SP through the irradiation of the ^{124}Xe . The ^{123}I decays with a half-life of 13.22 hours by electron capture process followed by emission of gamma radiation. The experimental extrapolation curve was determined and compared to Monte Carlo simulation, performed by code ESQUEMA. From the slope of the experimental curve, the total conversion coefficient for the 159 keV total gamma transition, α_{159} , was determined. All radioactive sources were also measured in an HPGe spectrometry system, in order to determine the gamma-ray emission probability per decay for several gamma transitions. All uncertainties involved and their correlations were analyzed applying the covariance matrix methodology and the measured parameters were compared with those from the literature.

SUMÁRIO

INTRODUÇÃO	1
OBJETIVOS	4
Objetivos Específicos	4
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	5
1.1. Decaimento Radioativo	5
1.1.1. Meia-vida	6
1.2. Modos de decaimento	7
1.2.1. Emissão de partículas α	7
1.2.2. Desintegração β	8
1.2.2.1. Decaimento β^-	8
1.2.2.2. Decaimento β^+	9
1.2.3. Captura Eletrônica (EC)	9
1.2.4. Radiação γ	10
1.2.4.1. Conversão interna	11
1.2.5. Rearranjo Eletrônico	11
1.2.6. Raios X Característicos	12
1.2.7. Elétrons Auger	12
1.2.8. Principais formas de interação da radiação eletromagnética com a matéria	13
1.2.8.1. Efeito Fotoelétrico	13
1.2.8.2. Espalhamento Compton	14

1.2.8.3. Produção de Pares.....	15
1.3. Método de Medida Primária da Atividade	17
1.3.1. Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência.....	19
1.4. Probabilidade de Emissão γ por decaimento	25
1.5. Calibração do espectrômetro por meio da curva da eficiência.....	27
1.6. Análise de incertezas: Método de análise de covariâncias.....	28
1.7. Método de Monte Carlo.....	30
2. PADRONIZAÇÃO DO ^{123}I	32
2.1. ^{123}I	32
2.2. Fórmula da coincidência para o ^{123}I	36
3. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$	38
3.1. Preparação da amostra radioativa.....	38
3.2. Arranjo Experimental	40
3.2.1. Contador Proporcional $4\pi(\text{PC})$	40
3.2.2. Cristal Cintilador de NaI(Tl).....	41
3.2.3. Sistema Eletrônico	44
3.3. Correções Aplicadas	47
3.3.1. Correção para o tempo morto	47
3.3.2. Correção para o tempo de resolução	48
3.3.3. Correção para a radiação de fundo.....	48
3.3.4. Correção do decaimento radioativo.....	49
3.3.5. Medida das amostras	50
4. ESPECTROMETRIA GAMA COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO HIPERPURO (HPGe).....	52
4.1. Detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe)	52
4.2. Arranjo Experimental	53
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES	54

5.1. Resultados da Padronização do ^{123}I medida no sistema de coincidências $4\pi(\text{X,A})-\gamma$	54
5.2. Determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 159 keV.....	61
5.3. Medida da probabilidade de emissão de raios gama (I_γ) por decaimento	62
6. CONCLUSÕES.....	79
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	80

INTRODUÇÃO

Na metrologia nuclear o desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos tem como objetivo a melhoria dos dados nucleares em termos de precisão e exatidão, visando à confiabilidade dos resultados obtidos, quando do uso destes radionuclídeos.

Estas melhorias irão refletir em todos os campos de aplicação da energia nuclear, seja na indústria, agricultura, proteção radiológica, medicina etc..

Nestas aplicações os sistemas de medida usados são em sua maioria sistemas de medida secundários ou terciários que necessitam além dos parâmetros nucleares dos radionuclídeos, serem calibrados com boa exatidão. Para esta calibração são usadas fontes radioativas denominadas fontes padrão, cuja atividade é determinada em sistemas primários, os quais não dependem do conhecimento prévio dos parâmetros nucleares, com exceção da meia vida.

Um laboratório de metrologia de radionuclídeos tem como tarefa fundamental manter e fornecer padrões radioativos com boa exatidão e contribuir na melhoria dos dados nucleares por meio de medidas de precisão.

O Laboratório de Metrologia Nuclear do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, (LMN, IPEN/SP), visando sua capacitação na padronização de radionuclídeos, tem desenvolvido sistemas e métodos de padronização de radionuclídeos tanto de uso em medicina nuclear como é o caso do ^{51}Cr ⁽¹⁾, ^{45}Ca ⁽²⁾ e de radionuclídeos de grande interesse para calibração de sistemas de medida nos diversos campos de aplicação, como é o caso do ^{55}Fe ⁽³⁾, ^{241}Am ⁽⁴⁾, participando de comparações internacionais patrocinadas pelo Bureau International des Poids et Mesures da França, garantido a rastreabilidade e a confiabilidade de seus resultados comprovando o excelente grau de confiança obtido nos sistemas e medidas utilizados.

Entre os métodos de padronização de radionuclídeos, o método de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ é um dos métodos primários mais empregados em metrologia nuclear para determinar a atividade de um radionuclídeo, pois possibilita obter os

resultados com boa exatidão, não dependendo dos parâmetros do esquema de decaimento do radionuclídeo em estudo, assim como do conhecimento prévio das eficiências de detecção ⁽⁵⁾.

Neste trabalho foi desenvolvida a metodologia de padronização do ¹²³I em um sistema de coincidências 4πβ-γ que emprega um contador proporcional (PC) em geometria 4π operado a gás fluente associado à cintiladores de NaI(Tl)

A escolha deste radionuclídeo foi feita por ser muito utilizado em medicina nuclear para diagnóstico de feocromocitomas, neuroblastomas e outros tumores, em estudos do miocárdio quando na forma de metaiodobenzilguanidina-¹²³I e em estudos do metabolismo da glândula da tireóide quando na forma de solução de Na¹²³I em NaOH 0,02 N ⁽⁶⁾.

O ¹²³I utilizado na forma de iodeto de sódio foi produzido no ciclotron Cyclone-30 do IPEN-CNEN/SP, por meio da irradiação do ¹²⁴Xe ⁽⁶⁾, por meio da reação $^{124}\text{Xe}(p, 2n)^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$

O ¹²³I decai com uma meia vida de 13,22 horas ⁽⁷⁾ pelo processo de captura eletrônica emitindo elétrons Auger e raios X característicos do ¹²³Te, seguidos da emissão de um fóton gama principal de 159 keV.

O conhecimento da probabilidade de emissão gama por decaimento é um parâmetro imprescindível quando radionuclídeos emissores gama são utilizados nos vários campos de aplicação da radiação, uma vez que, o valor da intensidade gama absoluta com boa exatidão é diretamente relacionada ao resultado obtido no valor da atividade do radionuclídeo e consequentemente na sua aplicação. Este parâmetro é importante também, do ponto de vista acadêmico, em estudos de estrutura nuclear.

Aliado ao desenvolvimento de métodos de medida de radionuclídeos o LMN tem efetuado medidas de parâmetros nucleares contribuindo com a melhoria do conhecimento nesta área ⁽⁸⁾, ⁽⁹⁾.

Neste trabalho unindo os resultados da atividade absoluta obtida em sistema primário com medidas da radiação gama, em espectrômetro gama calibrado, foi determinada a probabilidade de emissão gama por decaimento dos fótons gama emitidos, assim como o valor do coeficiente de conversão interna total da transição de

159 keV do ^{123}I , por meio da técnica de extrapolação linear da eficiência. Também foi realizado um estudo das probabilidades de emissão γ por decaimento do ^{123}I . Os resultados obtidos foram comparados com os valores da literatura.

A metodologia de análise e de medida utilizada para a obtenção dos resultados da padronização do ^{123}I apresentada neste trabalho foi desenvolvido no próprio laboratório do LMN e será apresentada e discutida nos capítulos seguintes.

No Capítulo 1 são apresentados os fundamentos teóricos envolvendo os tipos de decaimento radioativo, os métodos de padronização e medidas utilizados, probabilidade da emissão γ por decaimento e os conceitos da metodologia de análise de covariâncias aplicada para a determinação das incertezas envolvidas.

O Capítulo 2 apresenta as características do radionuclídeo padronizado, a fórmula da coincidência para o caso do ^{123}I e a técnica de preparação das fontes.

O Capítulo 3 apresenta o arranjo experimental do sistema de coincidências, o método de análise dos dados e as correções aplicadas, bem como o método de simulação da curva de extrapolação da eficiência pela técnica de Monte Carlo.

No Capítulo 4 são apresentadas as características do espectrômetro gama com detector semicondutor de germânio hiperpuro e o arranjo experimental.

No Capítulo 5 são apresentados os resultados obtidos para as padronizações em sistema de medida absoluta e para as probabilidades de emissão gama por decaimento.

O Capítulo 6 apresenta as conclusões e sugestões para trabalhos futuros.

OBJETIVOS

O presente trabalho tem como objetivo a aplicação do método de coincidências $4\pi(X,A)$ - γ na padronização do ^{123}I , a determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento dos fótons emitidos e do coeficiente de conversão interna total da transição de 159 keV.

A relevância do tema se dá pela necessidade de fontes padrões e de parâmetros nucleares com boa exatidão.

Objetivos Específicos

Padronização do ^{123}I realizada no sistema convencional TAC (Time to Amplitude Converter) desenvolvido no LMN e aplicação do programa ESQUEMA, por meio da técnica de simulação de Monte Carlo para comparação com os valores experimentais.

Determinação α_{159} .

Determinação com melhor exatidão das probabilidades de emissão das radiações gama de menor intensidade, os quais apresentam na literatura incertezas da ordem de 10%.

1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste capítulo serão abordados os conceitos relativos à lei de decaimento radioativo com um breve resumo dos fenômenos que ocorrem na detecção da radiação. Também será abordado o método de coincidências utilizado para o desenvolvimento do projeto, além do método de análise de covariâncias para a determinação das incertezas envolvidas.

1.1. Decaimento Radioativo

Alguns núcleos são instáveis, ou seja, as respectivas combinações de prótons e nêutrons não originam configurações nucleares estáveis. Esses núcleos, chamados radioativos, tendem ao estado fundamental por meio da emissão de vários tipos de radiações com diferentes características, tais como partículas α , elétrons, pósitrons, neutrinos e radiação eletromagnética (fótons γ) ⁽¹⁰⁾.

Os principais parâmetros nucleares no decaimento radioativo de um radionuclídeo incluem ⁽¹⁰⁾:

- Meia-vida;
- Energia total de decaimento (Q) e frações de ramificação;
- Energias de partículas alfa e probabilidades de emissões;
- Energias de partículas betas e as probabilidades de emissões;
- Energias de captura eletrônica (e pósitrons) e as probabilidades de transições;
- Energias de raios gama, as probabilidades de emissão e coeficientes de conversão interna;
- Energias e probabilidades de emissão dos elétrons Auger, conversão eletrônica e dos raios-x. ⁽¹⁰⁾.

1.1.1. Meia-vida

No decaimento radioativo o número de átomos decaindo por unidade de tempo é denominado atividade (A) dada pela equação:

$$A = N\lambda = \frac{-dN}{dt} \quad (1.1)$$

onde N é o número de átomos no instante t, λ é a constante de decaimento (probabilidade de que um átomo irá decair por unidade de tempo) e dN é o número de transições nucleares espontâneas desse estado energético no intervalo de tempo dt.

A atividade é expressa em Becquerels (Bq), onde 1 Bq é uma desintegração por segundo (dps). Integrando a equação 1.1 e substituindo os resultados, temos:

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.2)$$

onde N_0 é o número de átomos no instante $t = 0$.

Cada radionuclídeo tem uma constante de decaimento característica (λ) que está relacionada com a meia-vida ($t_{1/2}$), isto é, o tempo necessário para que o número de átomos originais seja reduzido por um fator dois:

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.3)$$

A meia-vida de um radionuclídeo é um parâmetro primário em qualquer processo de decaimento radioativo⁽¹¹⁾.

1.2. Modos de decaimento

Nuclídeos com alta razão N/Z são ricos em nêutrons e sofrem decaimento radioativo para reduzir este valor, pela emissão de um elétron (que representa a conversão no núcleo de um nêutron em um próton).

Por outro lado, nuclídeos com baixa razão N/Z irão decair pela emissão de um pósitron (representando a conversão de um próton em um nêutron); o decaimento por captura eletrônica é um processo alternativo para emissão de pósitrons, em que o núcleo instável captura um elétron orbital produzindo um nuclídeo filho.

O decaimento α torna-se um processo dominante quando $Z \geq 80$, emitindo uma partícula α (núcleo de hélio).

1.2.1. Emissão de partículas α

Um núcleo de número atômico Z e número de massa A se desintegra pela emissão de uma partícula α gerando um núcleo filho com número atômico $Z-2$ e massa $A-4$ ⁽¹¹⁾.

O núcleo ${}^AX_Z$ é chamado núcleo pai e o núcleo ${}^{A-4}Y_{Z-2}$ é chamado núcleo filho.

A energia de desintegração α pode ser representada pela equação:

$$Q_\alpha = E_{\alpha_i} + E_l + E_{r_i} \quad (1.4)$$

onde E_{α_i} é a energia da partícula α emitida, E_l é o nível de energia do núcleo filho e E_{r_i} é a energia de recuo do núcleo remanescente.

Assim:

$$E_{r_i} = \frac{M_{\alpha}}{M_N + M_{\alpha}}(Q_{\alpha} - E_l) \quad (1.5)$$

sendo M_N a massa de recuo do núcleo filho, M_{α} a massa da partícula α . A partícula α é mantida dentro do núcleo pela barreira de potencial Coulombiano e escapa do núcleo por meio de um mecanismo de tunelamento.

1.2.2. Desintegração β

Muitos nuclídeos decaem por emissão de elétrons, pósitrons, ou captura eletrônica, sendo o estudo do decaimento β uma parte muito importante da espectroscopia nuclear.

1.2.2.1. Decaimento β^-

As partículas β^- são elétrons emitidos por núcleos instáveis que possuem um excesso de nêutrons. Neste decaimento, ocorre no núcleo atômico a conversão de um nêutron em um pítion com a emissão de um elétron negativo e de um antineutrino, de acordo com o esquema:

$$n \rightarrow p + \beta^- + \bar{\nu}$$

$${}_Z^AX \rightarrow {}_{Z+1}^AY + \beta^- + \bar{\nu}$$

A energia máxima é representada pela equação:

$$E_{\beta_{máx}^-} = Q^- - E_l \quad (1.6)$$

onde Q é a energia de desintegração total, igual à diferença de massas atômicas entre os estados fundamental do pai e do filho; E_l é o nível de energia para que o decaimento ocorra.

1.2.2.2. Decaimento β^+

O processo de decaimento β^+ é similar ao processo de decaimento β^- , mas neste caso um próton é convertido em um nêutron e um elétron positivo β^+ (ou pósitron) e um neutrino são emitidos do núcleo, de acordo com o esquema:

$$p \rightarrow n + \beta^+ + \nu$$

$${}_Z^A X \rightarrow {}_{Z-1}^A Y + \beta^+ + \nu$$

$$E_{\beta^+_{\max}} = Q^+ - 2m_0c^2 - E_l \quad (1.7)$$

Onde ν é um neutrino, Q^+ é a energia de desintegração total e $2m_0c^2$ é igual a 1,021998 MeV e m_0 é a massa de um elétron em repouso.

A emissão β^+ ocorre quando:

$$Q^+ - E_l > 2m_0c^2 \quad (1.8)$$

A energia de transição β é compartilhada entre o elétron (ou o pósitron) e o antineutrino (ou o neutrino), como uma distribuição contínua para as duas partículas que se estende de 0 até $E_{\beta_{\max}}$ ⁽¹⁰⁾.

1.2.3. Captura Eletrônica (EC)

Como uma alternativa à emissão β^+ , núcleos com excesso de prótons podem também transformar-se por meio da captura de um elétron orbital. Esta reação é muito semelhante ao decaimento β^+ mas com a partícula beta transposta

para o lado esquerdo. Portanto, o diagrama de níveis nucleares para EC é idêntico ao da emissão β^+ e seu esquema se dá:

A captura do elétron, no entanto, deixa um buraco na camada atômica que é preenchido por outro elétron atômico, dando origem à emissão de raios-X característicos ou elétrons Auger. Essas radiações quando detectadas podem ser utilizadas para sinalizar a reação de captura. Em geral, é um elétron da camada K a captura mais provável, embora, uma captura na camada L também seja possível de ocorrer, mas com uma probabilidade muito menor ⁽¹¹⁾.

1.2.4. Radiação γ

A transição gama ocorre quando um núcleo em um estado excitado se desexcita a um nível de energia mais baixo, por meio da emissão de um raio γ ou um elétron de conversão (e um par elétron-pósitron quando as condições de energia permitem). A probabilidade total P_{TP} é definida como ⁽¹⁰⁾:

$$P_{TP} = P_\gamma + P_{ce} + P_{e^\pm} \quad (1.9)$$

onde P_γ , P_{ce} e $P_{e^\pm}$ são as probabilidades de emissão dos raios γ , elétron de conversão e par elétron-pósitron, respectivamente.

A energia de emissão do raio γ pode ser representada pela equação:

$$E_\gamma = (E_i - E_f) - E_r \quad (1.10)$$

onde $E_i - E_f$ é a diferença de energia entre os níveis inicial e final da transição gama e E_r é a energia de recuo do núcleo no estado final:

$$E_r = \frac{(E_\gamma)^2}{2 M_N c^2} \quad (1.11)$$

onde M_N é a massa de recuo do núcleo filho. A energia de recuo é insignificante, exceto para gamas de altas energias e núcleos com baixo número atômico, por exemplo, da ordem de 42 eV no caso da emissão gama de 1369 keV do ^{24}Na .

1.2.4.1. Conversão interna

A energia de desexcitação do núcleo pode também ser transferida diretamente a um elétron da camada K, L, M,..., que é ejetado do átomo:

$$E_{ce_X} = E_\gamma - E_X \quad (1.12)$$

onde E_X é a energia de ligação do elétron da camada X.

O coeficiente de conversão interna do elétron na camada K é definido por:

$$\alpha_K = \frac{P_{ce_K}}{P_\gamma} \quad (1.13)$$

onde P_{ce_K} e P_γ são respectivamente as probabilidades de emissão do elétron de conversão da camada K e raios gama; termos similares também são definidos para as camadas L, M, N...

O coeficiente de conversão total, α_{total} é:

$$\alpha_{total} = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots = \frac{P_{ce}}{P_\gamma} \quad (1.14)$$

onde P_{ce} é a probabilidade total de emissão do elétron de conversão para uma dada transição.

1.2.5. Rearranjo Eletrônico

Alguns processos, como os casos de captura eletrônica e conversão interna, levam o átomo a um estado excitado provocando vacâncias (lacunas) em sua nuvem eletrônica. Devido a essas vacâncias a tendência natural é a de que haja um

rearranjo dos elétrons nas camadas eletrônicas com o intuito de preenchê-las atingindo a estabilidade. Este preenchimento é acompanhado da emissão de raios X ou de elétrons Auger, criando novas vacâncias nas camadas menos ligadas. A energia liberada corresponde a energia de ligação do elétron da camada na qual a vacância inicial foi causada.

1.2.6. Raios X Característicos

Raios X são radiações eletromagnéticas emitidas em transições dos elétrons atômicos entre diferentes estados no átomo. Se um elétron orbital for ejetado devido ao processo de excitação, o átomo pode permanecer em um estado excitado por um período de tempo. Então, há a tendência para os elétrons se rearranjarem de maneira que o átomo retorne ao seu estado de menor energia (ou fundamental). A energia liberada na mudança entre o estado excitado e o fundamental é dada pela diferença de energia entre os estados inicial e final.

1.2.7. Elétrons Auger

Pode ocorrer da energia de excitação do átomo ser transferida para um elétron de uma camada mais externa, o que acaba acarretando sua ejeção do átomo. Este elétron terá então uma energia dada pela diferença entre as energias de excitação do átomo e a energia de ligação da camada da qual o elétron foi ejetado. Este elétron é denominado de elétron Auger

A energia do elétron Auger é baixa se comparada com a das partículas β ou dos elétrons de conversão interna, já que a emissão deste tipo de elétron ocorre com maior probabilidade em radionuclídeos de Z baixo ($Z < 48$).

1.2.8. Principais formas de interação da radiação eletromagnética com a matéria

As principais formas de interação da radiação eletromagnética com a matéria são: efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e produção de pares. Esses processos envolvem o espalhamento ou a absorção da radiação pela matéria.

1.2.8.1. Efeito Fotoelétrico

O processo de interação pelo efeito fotoelétrico ocorre quando há a absorção total da radiação eletromagnética incidente em um átomo do meio absorvedor. Após a absorção total da energia ($h\nu$) por este átomo, um elétron é ejetado com energia (E_e), equivalente à diferença entre a energia total da radiação incidente ($h\nu$) e a energia de ligação (E_l) do elétron ⁽¹²⁾:

$$E_e = h\nu - E_l \quad (1.15)$$

A Figura 1.1 abaixo ilustra este processo.

Figura 1.1 - Interação por Efeito Fotoelétrico.

1.2.8.2. Espalhamento Compton

O processo de interação por Espalhamento Compton ocorre quando um fóton incide em um elétron livre e, após a interação, o fóton é espalhado em um ângulo θ com relação à trajetória original, com energia menor em relação ao fóton incidente. O elétron, por sua vez, é espalhado em um ângulo φ com a direção do fóton incidente⁽¹²⁾.

A Figura 1.2 representa o fenômeno.

Figura 1.2 - Espalhamento Compton.

Como esta interação respeita a conservação de energia e do momento, e sabendo a energia inicial do fóton incidente $E = h\nu$, a energia do fóton espalhado sendo $h\nu'$ e a do elétron espalhado E_e , as equações que nos mostram as novas energias do fóton e do elétron espalhados são dadas por:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (1.16)$$

$$E_e = h\nu \left[1 - \frac{1}{1 + \frac{h\nu}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)} \right] \quad (1.17)$$

onde $m_0 c^2$ é energia de repouso do elétron.

1.2.8.3. Produção de Pares

Para ocorrer uma interação por produção de pares, diferentemente das anteriores, a energia do fóton incidente deve ser superior a 1,022 MeV ⁽¹²⁾.

Após a interação que ocorre entre o fóton incidente e o campo de Coulomb do núcleo, um par elétron-pósitron é criado, onde cada um tem energia equivalente à metade da energia da radiação incidente. Como o pósitron é extremamente instável na presença de matéria, ele acaba interagindo com outro elétron e se aniquilam. Após esta aniquilação, são formados dois fótons de aniquilação, cada um com energia equivalente de 0,511 MeV, que partem em direções opostas mantendo o princípio fundamental da conservação da energia e do momento. A Figura 1.3 ilustra este fenômeno.

Figura 1.3 – Diagrama da interação com a matéria por Produção de Pares.

Para os diferentes processos de interação da radiação com a matéria acima citados existe uma probabilidade de ocorrência de cada um, que depende da energia da radiação incidente e do número atômico (Z) do meio absorvedor, como pode se observar na Figura 1.4.

Figura 1.4 – Gráfico de probabilidade de interação da radiação gama com a matéria em função do número atômico do meio absorvedor e da energia da radiação incidente ⁽¹²⁾.

A linha a esquerda representa a energia na qual o efeito fotoelétrico e o efeito Compton são igualmente prováveis. Já a linha a direita representa a energia na qual o efeito Compton e a produção de pares são igualmente prováveis, onde:

- σ probabilidade de ocorrer o efeito Compton
- τ probabilidade de ocorrer o efeito fotoelétrico
- κ probabilidade de ocorrer produção de pares

1.3. Método de Medida Primária da Atividade

Os métodos de medida de atividade podem ser realizados de duas formas distintas: medida relativa ou absoluta da atividade. Como neste trabalho utilizamos o método absoluto da atividade nos ateremos a descrever apenas este.

O método de medida direta, “primária” ou absoluta é aquele no qual não há a necessidade do conhecimento prévio de nenhum parâmetro absoluto, a não ser o tempo ⁽⁸⁾.

Das técnicas disponíveis para se realizar a medida primária da atividade podemos citar dois métodos:

1. O método direto, onde são realizadas medidas sob condições bem definidas, como eficiência de detecção, geometria do arranjo experimental, etc.
2. O método de coincidência, onde por meio das medidas das taxas de contagens, consegue-se obter o valor da atividade, sem a dependência do conhecimento do esquema de decaimento do radionuclídeo em questão ou conhecimento anterior dos parâmetros do detector, tais como eficiência, ângulo sólido, etc. ⁽¹³⁾

O método de coincidências pode ser aplicado para um grande número de radionuclídeos, mesmo para aqueles que apresentem esquemas de desintegração complexos.

O método é utilizado principalmente para radionuclídeos que se desintegram pela emissão simultânea (ou que pode ser considerada simultânea se comparado aos tempos de resolução da eletrônica utilizada) de duas ou mais radiações, como α - γ , β - γ , X- γ , e-X, Captura Eletrônica (X,A)- γ .

O princípio deste método de coincidência consiste na utilização de dois detectores distintos, sensíveis a cada tipo de radiação e um módulo que seja capaz de detectar os eventos que ocorrem simultaneamente nos detectores.

Considerando-se um caso genérico, com um esquema de decaimento simples (Figura 1.5) onde a desintegração se dá pela emissão de uma partícula genérica 1 seguida da emissão de uma partícula genérica 2, as taxas de contagem registradas em cada uma das vias de detecção são representadas pelas equações a seguir:

Figura 1.5 – Esquema de decaimento para um emissor genérico

$$N_1 = N_0 \cdot \varepsilon_1 \quad (1.18)$$

$$N_2 = N_0 \cdot \varepsilon_2 \quad (1.19)$$

$$N_c = N_0 \cdot \varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2 \quad (1.20)$$

onde:

N_0	atividade da fonte
N_1	taxa de contagem na via 1
N_2	taxa de contagem na via 2
N_c	taxa de contagem de coincidências
ε_1	eficiência de detecção da via 1
ε_2	eficiência de detecção da via 2

Multiplicando as equações (1.18) e (1.19) e dividindo pela equação (1.20), obtêm-se:

$$\frac{N_1 \cdot N_2}{N_C} = N_0 \quad (1.21)$$

De acordo com a equação (1.21) chegamos à conclusão de que a atividade do radionuclídeo pode ser determinada por meio das contagens observadas, não sendo necessário o conhecimento de nenhum outro parâmetro, lembrando que as contagens N_1 , N_2 e N_C foram corrigidas para a radiação de fundo, decaimento e tempo morto dos detectores.

1.3.1. Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência

Em um caso real, geralmente os radionuclídeos apresentam esquemas de decaimento complexos, em que há emissão de vários ramos beta seguidos de vários gamas, competindo com a emissão de elétrons por conversão interna.

Também não podemos desconsiderar outros fatores inerentes ao método de medida, como a possibilidade dos detectores serem sensíveis a vários tipos de radiação, e não somente aquela à qual eles se destinam.

Isso geralmente ocorre com o detector beta, que pode detectar também a radiação gama. O inverso raramente acontece, pois como a radiação beta é pouco penetrante não consegue atravessar a janela do detector gama.

Diferentemente do caso apresentado no item anterior que corresponde às condições ideais e que raramente são alcançadas, as equações para este método vão depender do esquema do radionuclídeo em estudo, e dos detectores utilizados.

Assim, as equações (1.18), (1.19), (1.20) e (1.21) são alteradas e a taxa de desintegração passa a depender dos parâmetros do esquema de decaimento.

Considerando um emissor β - γ com n ramos beta e P_r radiações gama para cada ramo beta, as equações que regem o método de coincidências podem ser escritas como ⁽¹⁴⁾:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{P_r} b_{r_s} \left(\frac{\alpha_{r_s} \varepsilon_{ec_{r_s}} + \varepsilon_{\beta \gamma_{r_s}}}{1 + \alpha_{r_s}} \right) \right] \quad (1.22)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \sum_{s=1}^{P_r} b_{r_s} \frac{\varepsilon_{\gamma_{r_s}}}{1 + \alpha_{r_s}} \quad (1.23)$$

$$N_C = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\beta_r} \left[\sum_{s=1}^{P_r} b_{r_s} \left(\frac{\varepsilon_{C_{r_s}}}{1 + \alpha_{r_s}} \right) - (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{P_r} b_{r_s} \varepsilon_{C_{r_s}} \right] \quad (1.24)$$

Sendo:

N_{β}	taxa de contagem no detector beta
N_{γ}	taxa de contagem no detector gama
N_C	taxa de contagem de coincidência
N_0	atividade inicial
a_r	coeficiente do r-ésimo ramo beta
ε_{β_r}	eficiência do detector beta para o r-ésimo ramo beta
b_{r_s}	abundância relativa do s-ésimo gama associado ao r-ésimo ramo beta
α_{r_s}	coeficiente de conversão interna total do s-ésimo gama associado ao r-ésimo ramo beta
$\varepsilon_{ec_{r_s}}$	eficiência do detector beta para elétrons de conversão interna

$\varepsilon_{\beta\gamma_{r_s}}$	eficiência do detector beta para a radiação gama
$\varepsilon_{\gamma_{r_s}}$	eficiência do s-ésimo gama associado ao r-ésimo ramo beta
$\varepsilon_{C_{r_s}}$	probabilidade de se registrar uma coincidência quando o ramo beta não é detectado, ou coincidências γ - γ

Para simplificar as equações (1.22), (1.23) e (1.24) podem-se omitir as somatórias em s, assim como as abundâncias relativas b_{r_s} , desde que as mesmas sejam consideradas implícitas.

Sendo assim, as equações podem ser reescritas como:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta_r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (1.25)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma_r} \quad (1.26)$$

$$N_C = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon'_{\gamma_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{C_r} \right] \quad (1.27)$$

$$\text{com } \varepsilon'_{\gamma_r} = \frac{\varepsilon_{\gamma_{r_s}}}{1 + \alpha_{r_s}}$$

com isso, a equação (1.21) com N_1 igual a N_{β} e a equação N_2 igual a N_{γ} passa a ser representada por:

$$\frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta_r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \left[\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma_r} \right]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon'_{\gamma_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{C_r} \right]} \quad (1.28)$$

E, portanto, a atividade N_0 será dada por:

$$N_0 = \frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_C} \cdot \frac{\sum_{r=1}^n a_r [\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon_{\gamma_r}' + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{C_r}]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta_r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \left[\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon_{\gamma_r}' \right]} \quad (1.29)$$

De acordo com as equações apresentadas acima, a determinação de N_0 está condicionada ao conhecimento prévio de parâmetros do esquema de desintegração e as probabilidades de detecção, o que extinguiria a principal característica do método apresentado no que se refere a sua independência com relação ao conhecimento prévio dos parâmetros citados acima, tornando-o não mais um método de medida primário.

Para resolver este problema, foi proposto por Baerg⁽¹⁵⁾ e Campion⁽¹⁶⁾ a “Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência”.

De acordo com esta técnica, pode-se determinar N_0 (atividade) de um nuclídeo com esquema de desintegração complexo sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema e das eficiências de detecção, se for possível constituir uma relação funcional entre N_β e o parâmetro de eficiência $\frac{N_C}{N_\gamma}$ tal que $N_\beta \rightarrow N_0$ quando

$$\frac{N_C}{N_\gamma} \rightarrow 1 .$$

Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos beta, $\varepsilon_{\beta r}$, puder ser representada como uma função de uma eficiência única, $\varepsilon_{\beta s}$, tal que:

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r (\varepsilon_{\beta s})$$

Ainda é necessário que a legitimidade dessas funções se estenda para eficiências unitárias, ou seja:

$$f_r \rightarrow 1 \text{ quando } \varepsilon_{\beta\gamma} \rightarrow 1.$$

Portanto N_β é simplesmente uma função F do parâmetro de eficiência $\frac{N_c}{N_\gamma}$

sendo que:

$$N_\beta = N_0 F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \quad (1.30)$$

onde $F \rightarrow 1$ quando $\frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1$.

A equação (1.30) é conhecida como a fórmula de coincidência generalizada⁽¹⁷⁾.

Em um intervalo restrito de variação do parâmetro de eficiência e para espectros semelhantes dos grupos beta ou no caso de haver um grupo beta, ou ainda, de ser possível isolar um deles por discriminação gama, pode-se determinar por meio do seu coeficiente angular a correção para o esquema de desintegração, pois esta função é linear.

A fórmula de coincidência generalizada pode ser escrita de forma que fique mais conveniente, utilizando-se $\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c}$ como variável dependente e

$\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right)$ como variável independente, obtendo-se uma função G da eficiência tal

que G tende a 1 quando o parâmetro $\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right)$ tende a zero. Esta função varia mais lentamente que a função F tornando-a mais apropriada para uma solução gráfica ou analítica.

Com isso, a equação (1.30) referente à fórmula geral de coincidência pode ser reescrita como:

$$\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c} = N_0 G \left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right) \quad (1.31)$$

onde $\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_0$, e a função $G \rightarrow 1$ quando $\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right) \rightarrow 0$.

Desta forma, determina-se a constante da correção para o esquema de desintegração, para um dado sistema de detecção e um dado radionuclídeo, sem utilizar os valores da literatura, conservando a característica do método mantendo-o como um método de medida primário.

Pode-se variar o parâmetro de eficiência utilizando-se absorvedores externos, por auto-absorção na fonte, discriminação eletrônica ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência beta.

A taxa de desintegração N_0 é determinada a partir do gráfico de $\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c}$ versus $\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right)$ por meio da função G que relaciona $\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c}$ com N_0 .

O valor extrapolado é obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais.

1.4. Probabilidade de Emissão γ por decaimento

Existem dois métodos distintos para se determinar a probabilidade de emissão gama por decaimento. O método absoluto onde a atividade da fonte é determinada em um sistema primário. O outro método chamado relativo considera todas as probabilidades de transições dos níveis excitados β e γ do esquema de desintegração.

No primeiro método é realizada uma análise quantitativa da radiação gama onde os parâmetros que devem ser considerados são a eficiência do pico de absorção total e a atividade do emissor gama. Com isso, a probabilidade de emissão gama por decaimento pode ser determinada por meio da razão:

$$I_{\gamma} = \frac{S}{\varepsilon_{\gamma} N_0} \quad (1.32)$$

onde:

S área líquida do pico de absorção total da energia gama de interesse, corrigida para decaimento, tempo morto, atenuação e geometria.

N_0 atividade da fonte obtida pelo método de medida primário.

ε_{γ} eficiência de detecção determinada por meio da curva de calibração em eficiência para o espectrômetro utilizado.

O segundo método pode ser adotado para núclídeos que possuam um esquema de decaimento no qual não exista transição beta para o nível fundamental, sendo as probabilidades de emissão determinadas pelas intensidades relativas dos raios gama e coeficientes de conversão interna⁽¹⁸⁾.

No caso de ^{123}I , a transição gama total do primeiro estado excitado do ^{123}Te para estado fundamental (159 keV) tem uma probabilidade de emissão por

decaimento próxima de 99%. Portanto, se as probabilidades por decaimento das outras transições que atingem o estado fundamental são conhecidas, o valor para a transição de 159 keV pode ser obtido por subtração de 100%.

A probabilidade de emissão de raios-gama por decaimento para esta transição dependerá da probabilidade total gama da transição e do valor do coeficiente de conversão interna total α_{159} .

Este último parâmetro pode ser obtido a partir da inclinação da curva de extrapolação, conforme explicado no item 2.2. Portanto, no presente trabalho, a probabilidade de emissão gama por decaimento para a transição 159 keV foi obtido a partir das probabilidades de transição gama por decaimento de outras transições de baixo rendimento combinados com o valor experimental de α_{159} , pela equação :

$$I_{\gamma}(159keV) = \frac{1}{1 + \alpha_{159}} \left(1 - \sum_{i=1}^n P_{\gamma i} \right) \quad (1.33)$$

onde:

$P_{\gamma i}$ é a probabilidade de transição gama por decaimento da i-ésima transição gama que atinge o estado fundamental do ^{123}Te ;

n é o número total destas transições gama.

A partir da Fig. 2.1 do esquema de decaimento, pode-se observar que as energias dos raios correspondentes são: 440,02, 505,34, 599,69, 687,95, 783,62, 894,8, 1036,64 e 1068,18 keV, respectivamente.

Todas estas probabilidades de transição foram determinadas no presente trabalho, considerando as probabilidades de emissão de raios gama por decaimento determinados experimentalmente e dos coeficientes de conversão retirados da literatura ⁽⁷⁾.

Os coeficientes de conversão interna teóricos foram calculados pelo programa de computador ICC (programa lcc99v3a - GETICC) ⁽¹⁹⁾.

A validade da equação 1.33 depende do pressuposto de que não há alimentação direta ao estado fundamental do Te durante o decaimento por captura eletrônica do ^{123}I . Esta hipótese foi considerada com base em informações do esquema de decaimento obtidas da literatura ⁽⁷⁾.

A escolha deste segundo método para a determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento para o radionuclídeo em questão foi feito porque este método permite a determinação das probabilidades de emissão com menor incerteza.

1.5. Calibração do espectrômetro por meio da curva da eficiência

A calibração em eficiência do espectrômetro é realizada por meio das medidas de fontes padrões, cujas características são bem conhecidas, tais como, energia, intensidade e atividade das mesmas.

Uma característica típica dessas fontes padrões é possuir uma meia-vida longa o suficiente para que não interfira na taxa de contagem. Esses radionuclídeos designados como primários, também apresentam como característica parâmetros com boa exatidão. A calibração é feita para uma determinada geometria, isto é, uma dada distância fonte-detector.

A eficiência é obtida pela equação:

$$\varepsilon(E_{\gamma i}) = \frac{S(E_{\gamma i})}{Ap(E_{\gamma i})T f_{\tau} f_a f_g f_c} \quad (1.34)$$

onde:

$\varepsilon(E_{\gamma i})$ eficiência para o i-ésimo gama de energia E

$S(E_{\gamma i})$ área sob o pico de absorção total do i-ésimo gama de energia E

A atividade absoluta da fonte na data de medida

$p(E_{\gamma i})$ probabilidade de emissão do i-ésimo gama de energia E

T	tempo de medida
f_{τ}	fator de correção para o tempo morto
f_a	fator de atenuação
f_g	fator de correção geométrico
f_c	fator de correção para efeito soma

A relação entre a eficiência e a energia pode ser interpretada por uma função logarítmica, sendo a curva determinada por um ajuste polinomial. A equação que se obtém será da forma:

$$\ln \varepsilon(E_{\gamma i}) = \sum_{j=0}^n c_j (\ln E_{\gamma i})^j \quad (1.35)$$

onde:

c_j	coeficiente de ajuste
n	grau do polinômio ajustado

1.6. Análise de incertezas: Método de análise de covariâncias

Em qualquer trabalho científico experimental, as observações e medições estão sujeitas a erros aleatórios intrínsecos, por exemplo, aos instrumentos utilizados para realizar as medidas. Sendo assim, o tratamento dessas incertezas requer um cuidado especial, principalmente quando se trata da determinação de padrões com boa exatidão, onde o objetivo é justamente obter uma medida precisa com uma incerteza associada menor possível.

A análise de covariâncias é uma metodologia recomendada por ser a forma mais completa de cálculo e apresentação das incertezas consideradas, pois além da incerteza total, essa metodologia também fornece informações sobre a existência de

um nível de correlação entre as incertezas dos parâmetros envolvidos no cálculo ^{(20), (21)}.

Estas informações fornecem a base para a construção da matriz de covariâncias.

De forma geral, supondo a existência de L fontes distintas de erros que determinam a incerteza total de um grupo de n dados $X = (x_1, x_2, x_3, \dots, x_n)$. Seja e_{il} o erro em X_i correspondente ao atributo l e C_1 a matriz de correlação correspondente a esses erros parciais com elementos C_{ijl} , sendo a mesma definição válida para todos os componentes de X.

O coeficiente C_{ijl} determina o grau de correlação entre os erros e_{xi} e e_{xj} devido ao efeito l, sendo seu valor limitado ao intervalo $[-1,1]$, podendo ter diferentes significados, de acordo com o valor assumido para C_{ijl} :

$C_{ijl} = 0$ indica a inexistência de correlação

$C_{ijl} = 1$ indica a existência de correlação positiva

$C_{ijl} = -1$ indica a existência de correlação negativa

$-1 < C_{ijl} < 0$ indica correlação negativa parcial

$0 < C_{ijl} < 1$ indica correlação positiva parcial

A matriz de covariâncias total que representa esse grupo de dados é formado pelo elemento V_{Xij} calculado pela expressão:

$$V_{Xij} = \sum_{l=1}^L C_{ijl} e_{il} e_{jl} \quad (1.36)$$

Sendo a incerteza total na i-ésima medida dada por:

$$\sigma_{Xi} = (V_{Xij})^{1/2} \quad (1.37)$$

1.7. Método de Monte Carlo

Neste trabalho foi aplicado o método de simulação da curva de extrapolação linear da eficiência por meio do programa ESQUEMA ⁽²²⁾ desenvolvido no LMN que utiliza a técnica de Monte Carlo ⁽²³⁾.

O programa ESQUEMA ⁽²²⁾ simula toda a interação da radiação no sistema de coincidência descrita pelo esquema de decaimento do radionuclídeo (considera os níveis excitados de energia e analisa as transições gama ou elétrons de conversão interna, de modo a determinar as contagens nos canais beta, gama e coincidência), considerando todos os materiais e geometrias do arranjo experimental, bem como as características das fontes radioativas.

O código utilizado para o transporte de radiação na simulação é o MCNP4X (Monte Carlo N Particle Transport Code System) ⁽²⁴⁾.

A estrutura do programa ESQUEMA é constituída por tabelas fornecidas pelo código MCNP4X referentes ao transporte de radiação, tabelas de eficiência beta e gama, arquivos de entrada e arquivos de saída.

Nos arquivos de entrada encontram-se as informações dos radionuclídeos tais como número atômico do elemento, energia de desintegração, números de níveis de energia do esquema de decaimento a serem populados. Também encontram-se informações sobre intensidades normalizadas dos ramos β , dos ramos γ e a matriz dos coeficientes de conversão interna total. Essas informações são inseridas por meio do arquivo Esquema.dat.

No arquivo de entrada Constant.dat encontram-se informações características da medida que se deseja simular, tais como: número de histórias/eventos, número de canais do multicanal, espessura mínima e máximas dos absorvedores, números de intervalos desses absorvedores, raio da arandela da fonte, resolução em energia do detector gama e energia de discriminação da vida beta. Os intervalos de energia gama que irão formar os eventos coincidentes com as partículas β são informadas no arquivo Npico.dat.

Nos arquivos de saída são encontradas as informações da simulação, como informações sobre a variação da espessura dos absorvedores, o parâmetro $\frac{N_{\beta} \cdot N_{\gamma}}{N_c}$, a sua incerteza em porcentagem e o parâmetro $\left(\frac{1 - N_c/N_{\gamma}}{N_c/N_{\gamma}} \right)$ em função de uma dada espessura do absorvedor. Com estes dados é construída a curva de extrapolação linear da eficiência predita pela simulação.

2. PADRONIZAÇÃO DO ^{123}I

Neste capítulo será apresentada uma descrição sobre a metodologia empregada para a padronização do ^{123}I .

2.1. ^{123}I

Como dito anteriormente, o ^{123}I decai com uma meia vida de 13,22 horas (7) pelo processo de captura eletrônica emitindo elétrons Auger e raios X característicos do ^{123}Te , seguidos da emissão da radiação gama.

Um esquema de decaimento do ^{123}I pode ser conferido na figura 2.1:

Figura 2.1 – Esquema de decaimento do ^{123}I (7).

A produção do ^{123}I pode ser feita pelo método direto utilizando óxido de telúrio enriquecido, por meio da reação com prótons de 24 MeV, ou a partir da irradiação do gás ^{124}Xe com prótons de 30 MeV. O ^{123}I utilizado neste trabalho foi gentilmente cedido pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN-CNEN/SP, na forma de iodeto de sódio, produzido no ciclotron Cyclone-30, por meio da irradiação do ^{124}Xe (6).

A tabela 2.1 apresenta as energias e intensidades das radiações mais intensas no decaimento do ^{123}I .

Tabela 2.1. Energias e intensidades das transições mais intensas no decaimento do ^{123}I . (7)

Tipo de Transição	Energia (keV)	Intensidade (%)
ϵ_1	132 ± 100	$0,008 \pm 0,001$
ϵ_2	164 ± 100	$0,002 \pm 0,001$
ϵ_3	204 ± 100	$0,0031 \pm 0,0004$
ϵ_4	305 ± 100	$0,073 \pm 0,002$
ϵ_5	416 ± 100	$0,149 \pm 0,003$
ϵ_6	430 ± 100	$0,0037 \pm 0,0002$
ϵ_7	502 ± 100	$0,406 \pm 0,007$
ϵ_8	512 ± 100	$1,51 \pm 0,02$
ϵ_9	600 ± 100	$0,0003 \pm 0,0001$
ϵ_{10}	695 ± 100	$0,405 \pm 0,006$
ϵ_{11}	710 ± 100	$0,003 \pm 0,001$
ϵ_{12}	760 ± 100	$0,425 \pm 0,010$
ϵ_{13}	1041 ± 100	$97,03 \pm 0,04$

Tabela 2.2. Energias e intensidades das transições mais intensas no decaimento do ^{123}I (7).

Tipo de Radiação	Energia (keV)	Intensidade (%)	α_{T}
$\gamma_{1,0}$	$158,99 \pm 0,05$	$99,22 \pm 0,30$	$0,1918 \pm 0,0019$
$\gamma_{13,10}$	$174,2 \pm 0,3$	$0,00099 \pm 0,0003$	$0,195 \pm 0,047$
$\gamma_{6,4}$	$182,61 \pm 0,08$	$0,021 \pm 0,006$	$0,168 \pm 0,038$
$\gamma_{7,4}$	$192,18 \pm 0,09$	$0,0227 \pm 0,0010$	$0,143 \pm 0,030$
$\gamma_{10,7}$	$197,22 \pm 0,11$	$0,0037 \pm 0,0019$	$0,132 \pm 0,026$
$\gamma_{6,3}$	$198,25 \pm 0,12$	$0,0040 \pm 0,0008$	$0,130 \pm 0,026$
$\gamma_{10,6}$	$206,79 \pm 0,10$	$0,0037 \pm 0,0009$	$0,114 \pm 0,021$
$\gamma_{7,3}$	$207,82 \pm 0,13$	$0,00125 \pm 0,00036$	$0,119 \pm 0,020$
$\gamma_{6,2}$	$247,96 \pm 0,08$	$0,0743 \pm 0,0025$	$0,065 \pm 0,008$
$\gamma_{7,2}$	$257,52 \pm 0,09$	$0,0017 \pm 0,0002$	$0,0640 \pm 0,0019$
$\gamma_{9,4}$	$278,26 \pm 0,08$	$0,0024 \pm 0,0004$	$0,0459 \pm 0,0036$
$\gamma_{2,1}$	$281,03 \pm 0,07$	$0,0822 \pm 0,0010$	$0,0422 \pm 0,0033$
$\gamma_{10,5}$	$295,17 \pm 0,21$	$0,001582 \pm 0,000004$	
$\gamma_{8,2}$	$329,38 \pm 0,18$	$0,0026 \pm 0,0006$	
$\gamma_{3,1}$	$330,71 \pm 0,11$	$0,01197 \pm 0,00034$	$0,0284 \pm 0,0009$
$\gamma_{9,2}$	$343,73 \pm 0,08$	$0,0044 \pm 0,0003$	
$\gamma_{4,1}$	$346,35 \pm 0,07$	$0,1287 \pm 0,0009$	$0,02407 \pm 0,00023$
$\gamma_{10,3}$	$405,04 \pm 0,14$	$0,00298 \pm 0,00023$	
$\gamma_{12,5}$	$437,5 \pm 0,03$	$0,007 \pm 0,007$	
$\gamma_{2,0}$	$440,02 \pm 0,05$	$0,4280 \pm 0,0044$	$0,0121 \pm 0,0007$
$\gamma_{10,2}$	$454,76 \pm 0,15$	$0,00412 \pm 0,00022$	
$\gamma_{4,0}$	$505,34 \pm 0,06$	$0,268 \pm 0,042$	$0,0093 \pm 0,0007$
$\gamma_{6,1}$	$528,96 \pm 0,07$	$1,28 \pm 0,12$	
$\gamma_{7,1}$	$538,54 \pm 0,08$	$0,393 \pm 0,013$	$0,038 \pm 0,031$
$\gamma_{11,2}$	$556,06 \pm 0,16$	$0,0029 \pm 0,0003$	
$\gamma_{13,4}$	$562,84 \pm 0,12$	$0,00115 \pm 0,00007$	
$\gamma_{13,3}$	$578,48 \pm 0,20$	$0,00126 \pm 0,00008$	
$\gamma_{5,0}$	$599,69 \pm 0,16$	$0,00266 \pm 0,00017$	
$\gamma_{8,1}$	$610,27 \pm 0,23$	$0,0011 \pm 0,0003$	
$\gamma_{9,1}$	$624,61 \pm 0,07$	$0,0802 \pm 0,0020$	$0,0049 \pm 0,0006$
$\gamma_{13,2}$	$628,26 \pm 0,22$	$0,00164 \pm 0,00014$	
$\gamma_{6,0}$	$687,95 \pm 0,10$	$0,0269 \pm 0,0006$	
$\gamma_{10,1}$	$735,78 \pm 0,09$	$0,0616 \pm 0,0008$	
$\gamma_{9,0}$	$783,62 \pm 0,06$	$0,0591 \pm 0,0011$	
$\gamma_{11,1}$	$837,1 \pm 0,2$	$0,000582 \pm 0,000008$	
$\gamma_{12,1}$	$877,65 \pm 0,17$	$0,00083 \pm 0,00007$	
$\gamma_{10,0}$	$894,8 \pm 0,2$	$0,00101 \pm 0,00007$	
$\gamma_{13,1}$	$909,19 \pm 0,12$	$0,00141 \pm 0,00008$	
$\gamma_{12,0}$	$1036,64 \pm 0,17$	$0,00097 \pm 0,00007$	
$\gamma_{13,0}$	$1068,18 \pm 0,15$	$0,00142 \pm 0,00007$	

2.2. Fórmula da coincidência para o ^{123}I

O ^{123}I decai pelo processo de captura eletrônica. Isso significa que as radiações detectadas pelo detector proporcional são os raios-X e elétrons Auger, então, os parâmetros das equações descritas pelo método de coincidências (Capítulo 1) que indicam o processo de emissão β podem ser substituídos, sem restrição, pelo processo de captura eletrônica. Os parâmetros que possuem índice β passam a ser indicados a partir de agora com o índice (X,A) ⁽²³⁾.

No caso do ^{123}I , as equações foram descritas com maiores detalhes no trabalho do Reher ⁽²³⁾. Negligenciando as transições gama de baixa intensidade, e selecionando a janela do detector gama para cobrir apenas o pico de absorção total de energia em 159 keV, as fórmulas podem ser escritas como:

$$N_{(X,A)} = N_0 \left[\varepsilon_{(X,A)} + (1 - \varepsilon_{(X,A)}) \left(\frac{\alpha_{159} \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{(X,A)\gamma}}{1 + \alpha_{159}} \right) \right] \quad (2.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (2.2)$$

$$N_C = N_0 \varepsilon_{(X,A)} \varepsilon_{\gamma} \quad (2.3)$$

sendo:

N_0	atividade da fonte
$N_{(X,A)}$	taxa de contagem do detector 4 π (PC)
N_{γ}	taxa de contagem do detector gama (cintilador)
N_C	taxa de contagem de coincidência
$\varepsilon_{(X,A)}$	eficiência total do detector beta (PC) para raios-X característicos e elétrons Auger
ε_{γ}	eficiência para o pico de raios-gama de 159 keV no cintilador

α_{159} coeficiente de conversão interna total da transição de 159 keV

ε_{ec} eficiência do elétron de conversão

$\varepsilon_{(X,A)\gamma}$ é a eficiência do PC para o raio gama da transição de 159 keV

Multiplicando as equações (2.1) e (2.2) e dividindo pela equação (2.3), obtêm-se:

$$\frac{N_{(X,A)} \cdot N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_{(X,A)})}{\varepsilon_{(X,A)}} \left(\frac{\alpha_{159} \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{(X,A)\gamma}}{1 + \alpha_{159}} \right) \right] \quad (2.4)$$

Do processo de variação da eficiência de detecção do ramo β , no limite, onde a extrapolação $1 - \varepsilon_{(X,A)} \rightarrow 0$, o valor de N_0 pode ser determinado. A partir da inclinação da curva de extrapolação experimental, obtém-se o valor do coeficiente de conversão interna total α_{159} .

A eficiência de elétrons de conversão foi considerada igual a 1 e o valor da eficiência gama do detector proporcional ($\varepsilon_{(X,A)\gamma}$) foi calculada pelo método de Monte Carlo com o código MCNPX⁽²⁵⁾.

Correções para o tempo morto e para coincidências acidentais foram aplicados de acordo com o formalismo de COX- Isham adaptadas por Smith⁽²⁶⁾.

3. ARRANJO EXPERIMENTAL DO SISTEMA $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$

3.1. Preparação da amostra radioativa

As amostras radioativas medidas no sistema de coincidência foram preparadas a partir de soluções cujas alíquotas são depositadas em substratos de COLLODION (nitrato de celulose) bem finos, com densidade superficial de 10 a 20 $\mu\text{g.cm}^{-2}$ minimizando a auto-absorção na fonte. Esse filme de Collodion é sustentado por uma arandela com 40 mm de diâmetro externo e 10 mm de diâmetro interno. A arandela é feita de aço inoxidável com 0,1 mm de espessura.

Os filmes de Collodion são metalizados com Au (densidade superficial de 10 $\mu\text{g.cm}^{-2}$) para torná-los condutores uma vez que o Collodion é isolante, evitando assim o acúmulo de cargas (as cargas migram para a arandela que está em contato com o suporte que é feito de latão).

As massas das fontes quando líquidas são determinadas gravimetricamente pelo método do picnômetro ⁽²⁷⁾, que consiste na determinação da massa da alíquota pela diferença obtida da pesagem do picnômetro antes e depois da deposição da alíquota no substrato. Neste caso foi utilizada a balança microanalítica modelo MC21S Sartorius com sensibilidade de 20 μg .

As fontes foram preparadas depositando-se a solução radioativa sobre o centro do Collodion. A secagem foi realizada em um dessecador após a aplicação de AgNO_3 (nitrato de prata) para evitar a volatilização do iodo.

Para a padronização no sistema de coincidências foi feita uma diluição de precisão com H_2O destilada sendo preparadas seis fontes. Foram também preparadas cinco fontes da solução original fornecida pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN para as medidas no espectrômetro gama.

Na figura 3.1 abaixo, é apresentada uma ilustração da amostra radioativa após todo o processo de preparo, e na figura 3.2 é apresentada uma foto das fontes radioativas utilizadas:

Figura 3.1 - Esquema da fonte depositada na arandela de Collodion metalizado.

Figura 3.2- Fonte depositada na arandela de Collodion metalizado

3.2. Arranjo Experimental

A padronização do ^{123}I foi realizada no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ pertencente ao Laboratório de Metrologia Nuclear do Centro do Reator de Pesquisas do IPEN. Esse sistema é constituído de um detector proporcional para detecção de raios-X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica e de dois cristais de NaI(Tl) para detecção da radiação gama emitida.

3.2.1. Contador Proporcional $4\pi(\text{PC})$

Como características gerais, o contador proporcional apresenta baixo ruído e baixa sensibilidade para radiação γ ($< 1\%$), alta eficiência na detecção de partículas β ($\approx 95\%$) e tempo de recuperação da ordem de 100 ns.

O detector proporcional do LMN é composto por duas partes simétricas de latão. Cada uma destas partes possui um anodo, constituído por um fio de aço inoxidável com diâmetro de 50 μm , muito bem esticado, preso por isoladores de teflon em cada um dos lados e ligados a conectores para alta tensão do outro. Entre essas placas é encaixada uma placa deslizante feita também de latão que serve como um suporte para a fonte radioativa. Devido a esta placa, não é necessário abrir o detector para posicionar a fonte em seu interior, onde se encontra a região sensível do mesmo. A vedação do sistema é garantida por anéis de borracha colocados em cada metade do detector.

Quando essas duas partes se encontram justapostas, o volume interno do sistema é delimitado, tornando-o aproximadamente cilíndrico, possuindo cerca de 3,0 cm de diâmetro e 7,5 cm de comprimento.

O interior do contador é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano (conhecido como mistura P10), operando em fluxo contínuo e à pressão de 0,1 MPa (pressão atmosférica).

Resumidamente, o processo de multiplicação gasosa, em que a carga original criada no gás é amplificada, ocorre em consequência do aumento do valor do

campo elétrico no gás para valores suficientemente altos. Durante a migração dessas cargas, muitas colisões ocorrem normalmente com as moléculas neutras do gás. Por causa de sua baixa mobilidade, os íons positivos e negativos atingem um valor muito baixo de energia média entre as colisões. Os elétrons livres, por outro lado, são facilmente acelerados pelo campo aplicado e adquirem energia cinética significativa ao colidirem com as moléculas do gás. Se essa energia for maior do que a energia de ionização da molécula de gás neutra, é possível que um par de íons adicional seja criado na colisão.

O elétron liberado pelo processo de ionização secundária também será acelerado pelo campo elétrico. Durante seu movimento de deriva subsequente, ele sofre colisões com outras moléculas neutras do gás, e por isso pode criar ionização adicional. O processo de multiplicação do gás toma a forma de uma cascata, conhecida como avalanche Townsend, em que cada elétron criado em tal colisão pode, eventualmente, gerar mais elétrons livres pelo mesmo processo. Essa avalanche termina quando todos os elétrons livres são coletados no anodo, sendo a corrente formada proporcional ao número de elétrons, que por sua vez, é proporcional à energia da partícula incidente, uma vez que o detector é operado na região proporcional apresentando um fator de multiplicação de aproximadamente 10^4 .

A tensão de operação do detector foi de 2050 V, as medidas realizadas em modo integral, discriminando-se apenas o ruído eletrônico.

3.2.2. Cristal Cintilador de NaI(Tl)

Dois cristais cintiladores de iodeto de sódio (NaI) ativado com tálio (Tl), de dimensões 76 mm x 54 mm foram acoplados em contato direto com os lados inferior e superior do contator proporcional.

O detector de cintilação é sem dúvida um dos detectores mais frequentemente e amplamente utilizado para a detecção de partículas em física nuclear e de partículas atualmente. O cintilador faz uso do fato de que certos materiais, quando atingidos por uma partícula ou radiação nuclear, emitem um

pequeno flash de luz, isto é, uma cintilação. Quando acoplado a um amplificador como um fotomultiplicador essas cintilações podem ser convertidas em pulsos elétricos que podem ser analisados e contados eletronicamente, fornecendo informações relativas à radiação incidente.

Os elementos básicos de um detector de cintilação estão ilustrados na figura 3.3. Geralmente, consiste de um material cintilante que é ópticamente acoplado a um fotomultiplicador diretamente ou por meio de um guia de luz. Como a radiação passa através do cintilador, excita os átomos e moléculas que compõem o cintilador causando a emissão de uma luz. Esta luz é transmitida ao fotomultiplicador onde é convertido em uma fraca corrente de fotoelétrons que por sua vez é amplificada por um sistema eletrônico multiplicador. O sinal de corrente resultante é então analisado por um sistema eletrônico ⁽²⁸⁾.

Figura 3.3 – Esquema de um detector cintilador ⁽²⁸⁾.

Materiais cintiladores possuem uma propriedade conhecida como luminescência. Materiais luminescentes, quando expostos a certas formas de energia, como por exemplo, luz, calor, radiação, etc, absorvem e reemitem a energia na forma de luz visível. Se a reemissão ocorre imediatamente após a absorção ou mais precisamente dentro de 10^{-8} s (10^{-8} s é o tempo aproximado necessário para que ocorra a transição atômica), o processo é geralmente chamado de fluorescência. No entanto, se a reemissão está atrasada porque o estado excitado é metaestável, o processo é chamado de fosforescência. Nesses casos, o tempo de atraso entre a absorção e reemissão pode durar entre alguns microssegundos até horas, dependendo do material.

Apesar de existirem muitos materiais cintilantes, nem todos são adequados para serem utilizados como detectores. Em geral, um detector cintilador bom deve satisfazer os seguintes requisitos:

- 1) Alta eficiência de conversão de energia excitada à radiação fluorescente.
- 2) Transparência a radiação fluorescente de modo a permitir a transmissão da luz.
- 3) Emissão de uma faixa espectral de acordo com a resposta espectral de fotomultiplicadores já existentes.
- 4) Uma constante de decaimento pequena, τ .

Atualmente, seis tipos de materiais cintiladores são utilizados: cristais orgânicos, líquidos orgânicos, plásticos, cristais inorgânicos, gases e vidros.

Neste trabalho foram utilizados cristais de cintilação inorgânicos de NaI(Tl).

A tensão de operação foi de 1100 V.

Todo o sistema de detecção foi disposto em uma blindagem de chumbo (≈ 5 cm de espessura) minimizando assim os efeitos da radiação de fundo, principalmente para os cristais de NaI(Tl) que são mais sensíveis a este tipo de radiação), como pode ser visualizado na Figura 3.4.

Figura 3.4 – Foto do detector proporcional (4π) com os dois detectores cintiladores de NaI(Tl) acoplados ao mesmo.

3.2.3. Sistema Eletrônico

Neste item iremos abordar o sistema eletrônico utilizado para a aquisição de dados, detalhando todos os módulos empregados.

Na figura 3.5 temos uma ilustração do diagrama de blocos do sistema eletrônico.

Figura 3.5- Diagrama de blocos do sistema eletrônico utilizado no sistema de coincidências $4\pi(X,A)-\gamma$.

O sistema consiste de três vias distintas. São elas:

Via beta (preto): A eletrônica utilizada consistiu em um pré-amplificador, que proporciona um acoplamento de impedância entre o detector e o amplificador e permite uma amplificação preliminar dos pulsos por um fator constante. O pré-amplificador deve possuir a característica de introduzir a menor quantidade possível de ruído ao sistema, e como os sinais de entrada são de baixa amplitude, o cabo que o liga ao detector é da ordem de 10 cm de comprimento, assim a interferência de campos externos e a capacitância dos cabos são diminuídas. O pré-amplificador foi conectado ao amplificador, que eleva proporcionalmente a amplitude do sinal de sua entrada até um valor mensurável e formata o sinal de forma conveniente para o seu futuro processamento.

O sinal proveniente do amplificador do contador proporcional então é enviado ao analisador de altura de pulso que agrupa os pulsos de acordo com a amplitude de cada um. Sendo assim, são selecionados apenas os intervalos de energia de interesse, no caso a medida é integral, eliminando-se apenas o ruído eletrônico que é da ordem de 2 keV. Após a seleção dos pulsos, os mesmos são enviados a dois geradores de porta e atraso em tempos distintos e finalmente ao módulo TAC (Time to Amplitude Converter) que transforma tempo em amplitude de pulso.

Via gama (vermelho): A eletrônica utilizada nessa via é semelhante aos pulsos provenientes da via beta; após os pulsos passarem pelo pré-amplificador e amplificador são somados por meio de um módulo denominado somador. Os intervalos de energia de interesse são selecionados por meio do analisador de altura de pulso. Neste caso, os picos de interesse são aqueles que se referem ao pico de absorção total. Assim como ocorre na aquisição de dados da via beta, os pulsos são enviados a dois geradores de porta e atraso em tempos distintos e finalmente ao módulo TAC que transforma tempo em amplitude de pulso.

Via de coincidência (roxo): as coincidências são registradas por meio dos geradores de porta e atraso no módulo TAC.

O módulo TAC utiliza um conversor de tempo em altura acoplado ao multicanal (MCA) onde é feito o registro do espectro de aquisição de dados.

O registro dos pulsos se dá por meio do seguinte modo: os pulsos do gerador de porta e atraso 1 que são provenientes das vias beta e gama são enviadas para a entrada “start” do TAC. Os pulsos do gerador de porta e atraso 2 que recebe os pulsos atrasados das vias gama e beta envia os mesmos para a entrada “stop” do TAC.

Resumidamente, o registro das contagens ocorre da seguinte forma: uma contagem γ quando ambos os pulsos (“start” e “stop”) forem originários dos cintiladores; uma contagem β quando ambos os pulsos forem originários do detector proporcional; e uma contagem de coincidência quando os pulsos forem originários de cada uma das vias. Este método de contagens é chamado de método TAC e foi desenvolvido no LMN (Laboratório de Metrologia Nuclear) do IPEN/SP.

O programa utilizado para emular o MCA, combinado com um hardware de memória multicanal e um computador pessoal é chamado MAESTRO (ORTEC). Este programa possibilita a visualização na tela do computador, em tempo real, do espectro que está sendo adquirido. As ferramentas disponíveis permitem, por exemplo, a localização dos picos, a delimitação da região de interesse e mudanças de escala.

3.3. Correções Aplicadas

Para a obtenção de um valor mais acurado do valor das taxas de contagens obtidas é necessário que se realize uma série de correções com relação aos efeitos que são intrínsecos ao sistema de medidas, como o tempo morto dos detectores e do sistema eletrônico, tempo de resolução, para radiação de fundo, coincidências acidentais e decaimento.

3.3.1. Correção para o tempo morto

O tempo morto de um detector é o intervalo de tempo mínimo, τ , necessário para que o detector registre dois eventos consecutivos. Se algum evento

chegar ao detector nesse intervalo de tempo, ele não será contabilizado, ocasionando uma perda na taxa de contagens observadas.

$$N = \frac{N'}{1 - N'\tau} \quad (3.1)$$

onde N' é a taxa de contagem registrada no detector e τ o tempo morto.

No sistema TAC o tempo morto considerado é o tempo morto dado pelo multicanal.

3.3.2. Correção para o tempo de resolução

A taxa de coincidência é obtida pela detecção de duas radiações consideradas simultâneas em relação ao tempo de resolução do sistema de detecção que possui um valor finito. Isso pode resultar em uma contagem de um pulso coincidente que foi ocasionado por dois eventos não relacionados. Estes eventos são denominados de coincidências espúrias ou acidentais e podem interferir no número de contagens, o que acarreta um erro no valor absoluto da taxa de contagem e por isso deve ser corrigido.

Esta correção foi realizada utilizando o programa CONTAC (desenvolvido no LMN) que utiliza o formalismo de Cox e Isham ⁽²⁹⁾, que foi adaptado por Smith ⁽³⁰⁾, ⁽²⁶⁾. Esta formulação matemática é exata para tempos mortos iguais tanto para a via de detecção beta quanto para a via de detecção gama como é o caso da presente medida.

3.3.3. Correção para a radiação de fundo

A radiação de fundo (ou background) corresponde a todas as radiações que incidem no detector, mas que não provém da fonte radioativa que está sendo medida (no caso, o ^{123}I), originando contagens adicionais.

Então, para ser feita a correção dessas contagens é realizada uma série de medidas sem a presença de fonte no detector, mas mantendo as mesmas condições eletrônicas do sistema. O tempo típico de medida da radiação de fundo foi de 500 s para que se obtivesse uma boa estatística já que essas contagens em geral são muito baixas.

A contagem da radiação de fundo era realizada intercaladamente com as medidas realizadas com as fontes.

As contagens da radiação de fundo são subtraídas das contagens realizadas com a fonte radioativa.

3.3.4. Correção do decaimento radioativo

Durante o tempo de medida da amostra, ocorre o processo de decaimento radioativo, o que ocasiona uma variação no valor da taxa de desintegração entre o começo e o fim da medida. Isso é mais significativo quando a meia-vida do elemento em questão é pequena se comparado ao tempo de medida. Por esse motivo deve ser realizada uma correção devido ao decaimento radioativo que ocorre durante a medida, que é dada pela seguinte equação:

$$N_r = N_m \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (3.2)$$

onde:

N_r	taxa de desintegração na data de referência
N_m	taxa de desintegração na data da medida
λ	constante de decaimento característico de cada radionuclídeo
t	tempo de medida
t_m	data da medida
t_r	data da referência

3.3.5. Medida das amostras

Neste projeto utilizou-se o detector operando em fluxo contínuo de gás, cujo fornecimento é do tipo único, ou seja, o gás passa pelo detector e é lançado à atmosfera. Por essa razão, foi utilizado um gás que não é prejudicial ao meio ambiente (no caso a conhecida mistura P10, já mencionada anteriormente).

Antes de se iniciar a aquisição de dados deixa-se fluir o gás dentro do detector para total preenchimento (eliminação do ar ambiente).

Após a estabilização do sistema eletrônico, as fontes foram inseridas no interior do detector e medidas por um tempo pré-determinado. Esse tempo deve ser o suficiente para que haja uma boa estatística de contagem.

A variação no parâmetro de ineficiência do detector foi realizada repetindo as medidas com a mesma fonte, porém acrescentando-se os filmes de Collodion metalizados sobre e sob a fonte, o que ocasiona uma variação na espessura e a consequente variação na sua atividade (a intenção é a de absorver os raios beta, ou elétrons neste caso, de menor energia).

O acréscimo dos absorvedores foi feita em ambiente com vapor de acetona, o que garante a adesão do absorvedor nos filmes evitando o aparecimento de bolhas de ar entre eles, o que causaria uma não uniformidade na fonte e na emissão da radiação (vale lembrar que a adesão do absorvedor de Collodion à fonte é definitiva), o que faz desta metodologia destrutiva, sem possibilidade de medir novamente a fonte sem os mesmos.

Os tempos típicos de uma medida são apresentados na tabela 3.1.

Tabela 3.1. Valores típicos para a realização de medidas

Descrição	Medidas da fonte	Medidas Radiação de fundo
Tempo	2000 s	500 s
Contagem via PC	2128 s ⁻¹	5,2 s ⁻¹
Contagem via γ	629 s ⁻¹	13 s ⁻¹
Contagem coincidência	179 s ⁻¹	0,1 s ⁻¹

4. ESPECTROMETRIA GAMA COM DETECTOR SEMICONDUTOR DE GERMÂNIO HIPERPURO (HPGE)

4.1. Detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe)

Os sistemas de espectrometria consistem basicamente de um detector de radiação nuclear acoplado a um sistema eletrônico composto de um pré-amplificador, amplificador e analisador de pulsos (multicanal). O seu princípio de funcionamento baseia-se na proporcionalidade que existe entre a amplitude do pulso produzido e a energia da radiação incidente.

A radiação eletromagnética interage com o cristal semicondutor por meio do efeito fotoelétrico, efeito Compton ou formação de pares, transferindo, conforme o efeito, toda ou parte de sua energia para o detector. Essa transferência de energia se dá por meio da liberação de elétrons do cristal semicondutor, gerando assim pares de íons elétron-lacuna. Dado que existe uma relação de proporcionalidade entre a quantidade dos portadores gerados e a energia depositada pela radiação, a resposta na saída do detector será um pulso elétrico de altura também proporcional a essa energia.

Os resultados desses pulsos gerados no detector são apresentados na forma de histograma, que representa o número de fótons absorvidos em função de suas energias. O espectro gama com seu pico (ou picos, dependendo do radionuclídeo em estudo) em distribuição gaussiana representa os fótons que depositaram toda a sua energia no interior do cristal, ou seja, pico de absorção total. Esses picos estão justapostos sobre o espectro contínuo que é originado pelas interações com perda parcial de energia.

A calibração do espectro de energia é realizada com fontes padrões de energias bem conhecidas, localizando os picos e relacionando seu canal à energia correspondente. Com estes dados, constrói-se uma curva de calibração por meio de

um ajuste linear. Por meio dessa curva é possível obter a identificação de um radionuclídeo. O pulsador é posicionado no final do espectro.

4.2. Arranjo Experimental

O detector de HPGe utilizado para realizar as medidas é da marca Canberra, modelo CX020, que possui 57,7 mm de diâmetro e 41,5 mm de altura. Junto ao cristal está posicionado o filtro de alta tensão e o pré-amplificador. O detector necessita de baixa temperatura (temperatura do N₂ líquido, -180°C) para que o seu funcionamento seja apropriado, além de proporcionar uma diminuição no ruído eletrônico e garantir uma alta resolução.

Os pulsos originários do detector passam pelo amplificador e são enviados ao analisador multicanal (placa instalada no microcomputador e é analisado pelo software MAESTRO).

Na figura 4.1 é apresentado o diagrama do sistema eletrônico do espectrômetro HPGe.

Figura 4.1- Sistema eletrônico utilizado para a aquisição de dados no HPGe.

Para a correção do tempo morto é utilizado o método do pulsador⁽³¹⁾. Este método que consiste injetar um pulso de 60 Hz na entrada teste do detector, com uma altura de pulso que posiciona o pico do pulsador no canal do espectro. A correção de tempo morto é obtida pela razão da área de pico do pulsador medido.

5. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo serão apresentados os resultados obtidos na padronização do ^{123}I e os valores das probabilidades de emissão gama.

5.1. Resultados da Padronização do ^{123}I medida no sistema de coincidências $4\pi(\text{X,A})-\gamma$

Para a determinação da curva de extrapolação linear da eficiência foram medidos os raios X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica no contador proporcional em coincidência com os raios γ de 159 keV, como discutido no item 1.2.1. Para se determinar o valor da atividade por meio de uma solução gráfica, estabelece-se uma variação da eficiência. A eficiência foi variada pelo uso de absorvedores externos.

Na Tabela 5.1 são apresentados os valores de N_c/N_γ , $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c N_\gamma$ e $N_{(\text{X,A})}N_\gamma/N_c$, obtidos para a determinação da atividade da solução de ^{123}I . A eficiência do detector proporcional foi variada de 51% a 18% por meio de absorvedores de Collodion colocados sobre e sob as fontes.

Por análise em espectrômetro gama foi detectada uma impureza de ^{121}Te na solução de ^{123}I cuja contribuição foi $<0,01\%$, na data de referência, sendo essa contribuição considerada desprezível.

Tabela 5.1. Valores de N_C/N_Y , $(1 - N_C/N_Y)/N_C N_Y$ e $N_{(X,A)}N_Y/N_C$, obtidos para a determinação da atividade da solução de ^{123}I .

Medidas	N_C/N_Y eficiência (%)	$(1 - N_C/N_Y)/N_C N_Y$ ineficiência	Atividade (kBq.g^{-1})
1	51,247	0,95133	633(5)
2	46,462	1,1523	647(4)
3	45,681	1,1891	644(4)
4	42,061	1,3775	660(5)
5	28,431	2,5173	766(8)
6	26,711	2,7438	785(8)
7	22,749	3,3957	848(9)
8	18,800	4,319	927(10)
9	18,628	4,3684	927(10)
10	18,265	4,4749	937(7)
11	18,103	4,524	947(12)

A Figura 5.1 apresenta o espectro de raios gama teórico calculado pelo código ESQUEMA para o ^{123}I , em comparação com o espectro experimental, utilizando os dois cristais de NaI(Tl) . O pico observado corresponde ao raio gama de 159 keV. As intensidades dos outros raios gama são pouco visíveis. Observa-se um bom acordo entre os espectros experimentais e calculados. Nesta figura é indicado o intervalo de energia γ selecionado.

Figura 5.1- Comparação entre o espectro calculado e o obtido experimentalmente.

Os dados registrados no sistema foram analisados pelo programa CONTAC⁽³²⁾ que determinou os valores de $N_{(X,A)}N_{\gamma}/N_c$ e $(1-N_c/N_{\gamma})/(N_{\gamma}/N_c)$.

A atividade e sua incerteza foram determinadas por meio do ajuste pelo método de mínimos quadrados pelo programa LINFIT⁽³³⁾. Neste programa são consideradas as incertezas parciais referentes à: estatística de contagem, eficiência, massa e decaimento radioativo com suas respectivas correlações.

Na figura 5.2 são apresentados os pontos experimentais e a curva ajustada pelo programa LINFIT juntamente com a curva predita pelo programa ESQUEMA, normalizada para a atividade final.

Figura 5.2- Curva de extrapolação do ^{123}I .

Para a determinação da atividade experimental foi ajustado um polinômio de grau 2. Na tabela 5.2 são apresentados os parâmetros do ajuste com sua respectiva matriz de covariância.

Tabela 5.2. Parâmetros de ajuste polinomial com respectiva matriz de covariâncias

	Parâmetros Extrapolação (x 10³)	Matriz de Covariância (x 10⁶)	
a	544,5 ± 2,5	614.473	
b	87,95 ± 1,20	235.576	143.703

Na tabela 5.3 são apresentados os resultados obtidos pela simulação de Monte Carlo para atividade unitária correspondente as eficiências experimentais juntamente com a atividade pelo cálculo de Monte Carlo obtida pela média da razão $(N_{(X,A)}N_{\gamma}/N_C)_{\text{exp}}/(N_{(X,A)}N_{\gamma}/N_C)_{\text{MC}}$ com as incertezas percentuais consideradas. Na última linha são apontadas as correlações.

Tabela 5.3. Resultados obtidos para atividade unitária pela simulação de Monte Carlo

Ineficiência	Atividade Unitária	Razão	σ_{est}	σ_{efic}	σ_{massa}	σ_{dec}	σ_{MC}
0,951	1,151	550,1	0,16	0,45	0,1	0,02	0,11
1,152	1,183	547,1	0,11	0,37	0,1	0,02	0,11
1,189	1,189	542,2	0,11	0,50	0,1	0,02	0,15
1,378	1,219	541,6	0,16	0,50	0,1	0,03	0,15
2,517	1,400	547	0,26	0,84	0,1	0,03	0,15
2,744	1,436	546,5	0,26	0,92	0,1	0,03	0,15
3,396	1,539	550,8	0,26	0,89	0,1	0,06	0,16
4,319	1,685	550,2	0,26	0,92	0,1	0,05	0,16
4,368	1,693	547,5	0,32	1,14	0,1	0,03	0,18
4,475	1,710	548,0	0,16	0,56	0,1	0,04	0,18
4,524	1,718	551,1	0,26	1,05	0,1	0,06	0,18
Correlação			0	0	1	1	1

1 correlacionados; 0 não correlacionados

O valor de N_0 , obtido por meio do cálculo de Monte Carlo foi de 546,7 (14) kBq.g⁻¹. Este valor concorda dentro da incerteza experimental, com o valor obtido pelo ajuste linear aos dados experimentais.

Os resíduos entre os dados experimentais e curva ajustada são mostrados na figura 5.3. A distribuição de pontos é bastante uniforme e não mostra qualquer tendência perceptível.

Figura 5.3- Curva de resíduos entre os dados experimentais e a curva ajustada.

Na tabela 5.4 são apresentadas as incertezas parciais típicas em porcentagem consideradas na determinação da atividade, nesta tabela consta também o tipo da incerteza, A estatística e B sistemática. A principal contribuição para a incerteza total vem da curva de extrapolação.

Tabela 5.4. Incertezas parciais típicas consideradas na determinação da atividade

Componente	Tipo	Valor (%)	Observação
Pesagem	B	0,07	Balança
Tempo Morto	B	0,10	Método do Pulsador
Radiação de Fundo	A	0,10	Contagem estatística
Decaimento	B	0,01	
Tempo de Resolução	B	0,10	Coincidências Acidentais
Curva de extrapolação	A	0,46	Estatística da curva de ajuste
Incerteza combinada		0,49	

5.2. Determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 159 keV

Da razão b/a que corresponde a inclinação da curva de extrapolação podemos determinar o valor do coeficiente de conversão interna total α_T para a transição de 159 keV, conforme equação 5.1:

$$\frac{b}{a} = \frac{\alpha_{159}\varepsilon_{ec} + \varepsilon_{(X,A)\gamma}}{1 + \alpha_{159}} \quad (5.1)$$

onde $\varepsilon_{(X,A)\gamma}$ é igual a 0,0019(4) (calculado pelo MCNPX) e ε_{ec} é igual a 1 (para energias maiores de 20 keV).

Na tabela 5.5 é apresentado o valor do coeficiente de conversão interna total da transição de 159 keV (α_T) obtido neste trabalho, comparado com os resultados da literatura.

Tabela 5.5 Tabela comparativa do valor de α_T experimental e da literatura.

α_{159}	Referência
$0,1905 \pm 0,0032$	Este trabalho
$0,1918 \pm 0,0019$	Christé ⁽⁷⁾
$0,189 \pm 0,014$	Raman ⁽³⁴⁾
0,1891	Ohya ⁽³⁵⁾

5.3. Medida da probabilidade de emissão de raios gama (I_γ) por decaimento

A curva de eficiência do espectrômetro HPGe utilizada neste trabalho foi obtida por meio de medidas com as fontes padrões de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{137}Cs e ^{133}Ba fornecidas pela Agência Internacional de Energia Atômica.

A distância fonte-detector foi de 17,9 cm, com um absorvedor de chumbo de 0,14 mm introduzido sob as fontes.

O uso do absorvedor de chumbo foi necessário porque o ^{123}I emite muitos raios-X que interferem por efeito soma nos picos dos gama emitidos.

Na figura 5.4 e 5.5 são apresentados os espectros do ^{123}I com e sem absorvedor de chumbo. No espectro da medida com chumbo os raios -X não estão mais visíveis.

Figura 5.4- Espectro gama do ^{123}I sem absorvedor de chumbo.

Figura 5.5- Espectro gama do ^{123}I com absorvedor de chumbo

Na figura 5.6 é apresentada a curva do espectrômetro com absorvedor de chumbo. Como pode ser visto com o uso deste absorvedor, ocorre uma descontinuidade na região de baixa energia ocasionada pela absorção preferencial da borda k do material atenuador (Pb) de modo que ficaria difícil o ajuste de uma curva nesta região, uma vez que havia falta de pontos experimentais entre 121 e 244 keV.

Para contornar este problema, a fim de obter eficiências de pico para ^{123}I , foi feito um cálculo da curva de eficiência pela técnica de Monte Carlo.

Figura 5.6- Curva de eficiência do espectrômetro HPGe utilizando fontes padrões de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{137}Cs e ^{133}Ba e cálculo de Monte Carlo.

As eficiências gama de pico experimentais com absorvedor de chumbo são apresentadas na tabela 5.6

Tabela 5.6. Eficiências de pico experimentais com absorvedor de chumbo

Nuclídeo	E (keV)	Eficiência Experimental	Erro (%)
¹⁵² Eu	121,78	2,0829E-03	1,79
	244,70	2,0206E-03	1,82
	344,28	1,4881E-03	1,75
	411,13	1,2561E-03	2,16
	443,96	1,1581E-03	2,02
	778,90	6,4458E-04	1,82
	867,39	6,1465E-04	2,26
	964,05	5,3643E-04	1,80
	1112,09	4,8156E-04	1,82
	1408,02	4,0102E-04	1,77
¹³³ Ba	53,07	1,4341E-03	3,97
	81,00	2,6078E-03	1,79
	276,40	1,7638E-03	1,69
	302,85	1,6572E-03	1,58
	356,02	1,4092E-03	1,53
	383,85	1,3137E-03	1,62
¹³⁷ Cs	661,66	7,5462E-04	1,29
⁶⁰ Co	1173,24	4,5470E-04	1,25
	1332,50	4,0568E-04	1,18

A Figura 5.7 mostra os resíduos entre as eficiências de pico experimental HPGe e os valores calculados. Como é possível observar no gráfico dos resíduos a distribuição é uniforme e não mostra nenhuma tendência perceptível.

Figura 5.7- Curva de resíduos entre as eficiências do pico experimental HPGe e os valores calculados obtidos com código MCNPX

O erro na eficiência de pico calculada foi estimado a partir da média dos resíduos, resultando em 1,6%.

Para a determinação das intensidades gama foram registrados seis espectros de uma mesma fonte, com um tempo de aquisição de 10.000 segundos para cada medida do espectro, totalizando 60.000 segundos de medida. As medidas dos seis espectros foram obtidas sem tirar a fonte do detector.

As áreas dos picos de absorção total foram determinadas pelo software Maestro do multicanal sendo usados 8192 canais para o registro do espectro gama.

A atividade considerando-se a intensidade gama igual a um foi determinada pelo programa Alpino, desenvolvido no LMN.

Este programa calcula a atividade com sua incerteza, para uma data de referência pré-estabelecida considerando também o decaimento durante a medida .

Nas tabelas 5.7 a 5.12 são apresentados aos resultados obtidos para os espectros registrados.

Tabela 5.7. Resultados obtidos para espectro 01

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	149265400,00	0,01	1,56E+07	1,46	83,36	0,22
174,20	2932,99	43,49	3,07E+02	43,52	0,001639	0,000713
182,61	23812,41	26,14	2516,864	11,77679	0,013560353	0,001597
192,17	26371,79	4,31	2,84E+03	4,55	0,015157	0,000690
197,22	6597,63	17,57	7,18E+02	17,63	0,003835	0,000676
198,23						
206,79	7651,63	12,68	8,53E+02	12,76	0,004555	0,000581
207,80						
247,96	98333,52	1,21	1,24E+04	1,9	0,066376	0,001261
257,51	3913,41	18,48	5,09E+01	18,54	0,000272	0,000050
278,36					0,000000	0,000000
281,03	91802,76	1,25	1,29E+04	1,93	0,069089	0,001333
295,17	328,22	293,28	4,84E+01	293,28	0,000258	0,000757
329,38						
330,70	14460,06	4,91	2,38E+03	5,12	0,012688	0,000650
343,73						
346,35	128938,70	0,68	2,20E+04	1,61	0,117515	0,001892
405,02	2554,31	16,83	5,11E+02	16,89	0,002727	0,000461
437,50						
440,02	332310,00	0,27	7,25E+04	1,49	0,387447	0,005773
454,76	2866,53	11,42	6,47E+02	11,51	0,003455	0,000398
505,33	209266,80	0,31	5,24E+04	1,5	0,279962	0,004199
528,96	886671,85	0,15	2,32E+05	1,48	1,252041	0,018530
538,54	240065,74	0,32	6,40E+04	1,53	0,344939	0,005278
556,05	1335,60	14,98	3,69E+02	15,05	0,001973	0,000297
562,79	353,12	43,14	9,92E+01	43,16	0,000530	0,000229
578,26	1978,84	20,89	571,1	20,94	0,003077	0,000644
599,69	2150,77	9,23	6,44E+02	9,35	0,003439	0,000322
610,05	11,39	995,19	3,46E+00	995,19	0,000018	0,000184
624,57	45123,44	0,83	1,41E+04	1,68	0,075071	0,001261
628,26					0,000000	0,000000
687,95	15329,01	1,68	5,24E+03	2,23	0,027966	0,000624
735,78	25715,13	0,84	9,25E+03	1,69	0,049412	0,000835
783,59	25037,18	0,88	9,48E+03	1,71	0,050614	0,000866
837,10	131,91	55,92	5,27E+01	55,93	0,000282	0,000158
877,52	295,88	22,74	1,24E+02	22,79	0,000665	0,000151
894,80	294,29	17,17	1,27E+02	17,23	0,000676	0,000116
909,12	504,26	10,26	2,20E+02	10,37	0,001173	0,000122
1036,63	235,11	16,11	1,14E+02	16,18	0,000610	0,000099
1068,12	414,57	9,21	2,08E+02	9,33	0,001108	0,000103

Tabela 5.8. Resultados obtidos para espectro 02

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ. (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	127876900,00	0,01	1,55E+07	1,46	83,36	0,22
174,20	3626,51	30,24	4,39E+02	30,28	0,002366	0,000716
182,61	21949,42	24,416	2681,952	24,64	0,014449814	0,00356
192,17	22026,43	4,45	2,74E+03	4,68	0,014777	0,000692
197,22	4577,41	21,8	5,76E+02	21,85	0,003106	0,000679
198,23						
206,79	5607,14	14,87	7,22E+02	14,94	0,003896	0,000582
207,80						
247,96	84251,66	1,22	1,23E+04	1,91	0,066384	0,001268
257,51	2109,12	29,47	3,17E+01	29,5	0,000171	0,000050
278,36					0,000000	0,000000
281,03	78927,90	1,26	1,29E+04	1,93	0,069334	0,001338
295,17	-2192,42	-37,8	-3,73E+02	37,83	-0,002014	-0,000762
329,38						
330,70	11262,93	5,63	2,14E+03	5,82	0,011536	0,000671
343,73						
346,35	111593,70	0,7	2,20E+04	1,62	0,118720	0,001923
405,02	2296,35	16,6	5,31E+02	16,66	0,002862	0,000477
437,50						
440,02	283980,60	0,29	7,17E+04	1,49	0,386488	0,005759
454,76	2270,80	12,79	5,92E+02	12,87	0,003195	0,000411
505,33	180207,60	0,33	5,22E+04	1,5	0,281417	0,004221
528,96	762039,53	0,15	2,31E+05	1,48	1,244001	0,018411
538,54	205760,59	0,33	6,34E+04	1,53	0,341788	0,005229
556,05	1480,38	11,73	4,73E+02	11,82	0,002552	0,000302
562,79	610,46	21,6	1,98E+02	21,65	0,001069	0,000231
578,26	912,3338	39,94	304,3944	39,96	0,00164	0,000655
599,69	1557,14	11,13	5,39E+02	11,22	0,002906	0,000326
610,05	-85,70	-114,86	-3,01E+01	114,86	-0,000162	-0,000186
624,57	39404,61	0,83	1,42E+04	1,69	0,076522	0,001293
628,26					0,000000	0,000000
687,95	13141,18	1,73	5,19E+03	2,27	0,027985	0,000635
735,78	21806,58	0,89	9,07E+03	1,71	0,048911	0,000836
783,59	22011,17	0,89	9,63E+03	1,71	0,051941	0,000888
837,10	131,87	47,36	6,10E+01	47,38	0,000329	0,000156
877,52	239,76	24,51	1,17E+02	24,56	0,000629	0,000154
894,80	208,66	22,21	1,04E+02	22,25	0,000559	0,000124
909,12	556,11	8,45	2,80E+02	8,58	0,001510	0,000130
1036,63	262,37	12,83	1,47E+02	12,91	0,000794	0,000103
1068,12	334,36	11,3	1,94E+02	11,4	0,001044	0,000119

Tabela 5.9. Resultados obtidos para espectro 03

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ. (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	109969900,00	0,01	1,54E+07	1,46	83,36	0,22
174,20	1043,56	91,14	1,46E+02	91,15	0,000792	0,000722
182,61	20500,86	22,7136	2898,336	22,9376	0,015615647	0,003582
192,17	20809,00	4,09	3,00E+03	4,35	0,016234	0,000706
197,22	3304,23	26,15	4,81E+02	26,19	0,002607	0,000683
198,23						
206,79	3739,26	19,3	5,57E+02	19,35	0,003021	0,000585
207,80						
247,96	74710,14	1,2	1,26E+04	1,89	0,068456	0,001294
257,51	2380,77	22,64	4,14E+01	22,68	0,000225	0,000051
278,36					0,000000	0,000000
281,03	67561,02	1,28	1,27E+04	1,95	0,069020	0,001346
295,17	-848,88	-84,5	-1,67E+02	84,52	-0,000907	-0,000766
329,38						
330,70	11377,39	5,02	2,50E+03	5,23	0,013551	0,000709
343,73						
346,35	96270,37	0,74	2,20E+04	1,64	0,119097	0,001953
405,02	2360,34	14,5	6,31E+02	14,58	0,003421	0,000499
437,50						
440,02	242848,30	0,3	7,09E+04	1,49	0,384336	0,005727
454,76	1747,27	14,87	5,27E+02	14,94	0,002859	0,000427
505,33	154591,80	0,35	5,18E+04	1,5	0,280734	0,004211
528,96	655714,87	0,16	2,30E+05	1,48	1,238550	0,018331
538,54	177429,45	0,35	6,33E+04	1,53	0,341017	0,005218
556,05	1320,87	11,67	4,89E+02	11,77	0,002648	0,000312
562,79	461,67	25,04	1,73E+02	25,08	0,000940	0,000236
578,26	734,51	43,56	283,56	43,59	0,001528	0,000666
599,69	1349,87	11,24	5,41E+02	11,33	0,002930	0,000332
610,05	-97,83	-89,37	-3,97E+01	89,39	-0,000215	-0,000193
624,57	33424,05	0,88	1,39E+04	1,71	0,075480	0,001291
628,26					0,000000	0,000000
687,95	11070,72	1,79	5,06E+03	2,31	0,027416	0,000633
735,78	18942,61	0,93	9,12E+03	1,73	0,049407	0,000855
783,59	19008,44	0,93	9,62E+03	1,73	0,052161	0,000902
837,10	117,57	48,68	6,29E+01	48,7	0,000341	0,000166
877,52	216,90	23,19	1,22E+02	23,24	0,000661	0,000154
894,80	239,08	17,43	1,37E+02	17,49	0,000745	0,000130
909,12	434,35	10,26	2,53E+02	10,36	0,001372	0,000142
1036,63	238,74	13,73	1,55E+02	13,81	0,000840	0,000116
1068,12	298,72	11,45	2,00E+02	11,54	0,001084	0,000125

Tabela 5.10. Resultados obtidos para espectro 04

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ. (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	95140320,00	0,01	1,54E+07	1,46	83,36	0,22
174,20	175,36	475,25	2,84E+01	475,26	0,000154	0,000731
182,61	14662,46	27,9552	2398,592	28,1568	0,012923128	0,003639
192,17	17640,99	4,24	2,94E+03	4,49	0,015908	0,000714
197,22	2806,26	26,96	4,73E+02	27	0,002559	0,000691
198,23						
206,79	4717,71	13,31	8,14E+02	13,39	0,004406	0,000590
207,80						
247,96	65822,33	1,2	1,29E+04	1,89	0,069711	0,001318
257,51	825,07	57,16	1,66E+01	57,18	0,000090	0,000051
278,36					0,000000	0,000000
281,03	60084,58	1,27	1,31E+04	1,94	0,070946	0,001376
295,17	103,71	606,58	2,36E+01	606,58	0,000128	0,000777
329,38						
330,70	9130,55	5,72	2,32E+03	5,9	0,012570	0,000742
343,73						
346,35	82300,32	0,79	2,17E+04	1,66	0,117685	0,001954
405,02	1170,28	26,78	3,62E+02	26,82	0,001961	0,000526
437,50						
440,02	213545,50	0,31	7,22E+04	1,5	0,390639	0,005860
454,76	1844,41	12,79	6,44E+02	12,88	0,003488	0,000449
505,33	133539,50	0,37	5,18E+04	1,51	0,280301	0,004233
528,96	566610,13	0,17	2,30E+05	1,48	1,238329	0,018327
538,54	154256,96	0,37	6,37E+04	1,53	0,343050	0,005249
556,05	959,43	14,21	4,11E+02	14,29	0,002223	0,000318
562,79	334,05	30,79	1,45E+02	30,82	0,000786	0,000242
578,26	454,03	62,3	202,81	62,32	0,001093	0,000681
599,69	1059,37	12,6	4,91E+02	12,69	0,002658	0,000337
610,05	-71,16	-105,61	-3,34E+01	105,62	-0,000181	-0,000191
624,57	29062,02	0,91	1,40E+04	1,72	0,075862	0,001305
628,26					0,000000	0,000000
687,95	9201,92	1,93	4,87E+03	2,42	0,026340	0,000637
735,78	16345,03	0,98	9,10E+03	1,76	0,049277	0,000867
783,59	16571,79	0,96	9,71E+03	1,75	0,052562	0,000920
837,10	105,35	50,17	6,52E+01	50,2	0,000353	0,000177
877,52	257,76	16,84	1,68E+02	16,91	0,000908	0,000154
894,80	173,57	21,69	1,16E+02	21,74	0,000625	0,000136
909,12	367,16	11,09	2,48E+02	11,19	0,001340	0,000150
1036,63	188,44	16,3	1,42E+02	16,37	0,000767	0,000126
1068,12	230,96	15,19	1,79E+02	15,26	0,000969	0,000148

Tabela 5.11. Resultados obtidos para espectro 05

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	82620200,00	0,01	1,55E+07	1,46	83,36	0,22
174,20	179,27	410,31	3,36E+01	410,32	0,000181	0,000743
182,61	18308,44	19,8016	3465,504	20,0704	0,018671433	0,003747
192,17	18070,87	3,67	3,48E+03	3,95	0,018764	0,000741
197,22	2336,05	28,53	4,55E+02	28,57	0,002453	0,000701
198,23						
206,79	3056,19	18,18	6,10E+02	18,24	0,003287	0,000599
207,80						
247,96	58291,56	1,2	1,32E+04	1,89	0,071087	0,001344
257,51	1147,28	36,24	2,67E+01	36,27	0,000144	0,000052
278,36					0,000000	0,000000
281,03	52240,07	1,3	1,32E+04	1,96	0,071027	0,001392
295,17	-494,67	-112,19	-1,31E+02	112,2	-0,000703	-0,000789
329,38						
330,70	7200,26	6,64	2,12E+03	6,8	0,011415	0,000776
343,73						
346,35	71175,51	0,84	2,18E+04	1,69	0,117195	0,001981
405,02	1168,02	24,52	4,18E+02	24,57	0,002253	0,000554
437,50						
440,02	183700,80	0,33	7,18E+04	1,5	0,386941	0,005804
454,76	1518,35	14,05	6,14E+02	14,12	0,003306	0,000467
505,33	116094,30	0,39	5,21E+04	1,51	0,280591	0,004237
528,96	492634,11	0,18	2,31E+05	1,48	1,245819	0,018438
538,54	133863,07	0,39	6,39E+04	1,53	0,344458	0,005270
556,05	1036,21	11,66	5,13E+02	11,76	0,002765	0,000325
562,79	325,48	28,39	1,64E+02	28,43	0,000882	0,000251
578,26	793,63	32,24	410,1959	32,27	0,00221	0,000713
599,69	679,25	17,7	3,64E+02	17,76	0,001962	0,000348
610,05	38,98	177,02	2,12E+01	177,02	0,000114	0,000202
624,57	25115,99	0,96	1,40E+04	1,75	0,075494	0,001321
628,26					0,000000	0,000000
687,95	7801,54	2,06	4,77E+03	2,53	0,025714	0,000651
735,78	14017,81	1,05	9,03E+03	1,8	0,048662	0,000876
783,59	14303,19	1,03	9,70E+03	1,79	0,052238	0,000935
837,10	90,85	52,56	6,50E+01	52,58	0,000350	0,000184
877,52	141,14	33,09	1,06E+02	33,12	0,000573	0,000190
894,80	159,05	21,74	1,22E+02	21,79	0,000660	0,000144
909,12	254,15	15,66	1,98E+02	15,73	0,001068	0,000168
1036,63	162,65	17,21	1,41E+02	17,27	0,000762	0,000132
1068,12	196,83	16,14	1,76E+02	16,2	0,000951	0,000154

Tabela 5.12. Resultados obtidos para espectro 06

E (keV)	Área	Erro (%)	Ativ (Bq)	Erro (%)	Ig (%)	Erro abs
158,97	40367000,00	0,02	1,54E+07	1,47	83,36	0,22
174,20	368,34	114,89	1,41E+02	114,9	0,000761	0,000875
182,61	7898,307	26,432	3047,072	26,6336	0,016417006	0,004372
192,17	7781,24	4,94	3,06E+03	5,15	0,016536	0,000852
197,22	832,04	46,11	3,31E+02	46,13	0,001788	0,000825
198,23						
206,79	1516,34	21,06	6,17E+02	21,11	0,003338	0,000705
207,80						
247,96	28158,70	1,45	1,30E+04	2,06	0,070283	0,001448
257,51	154,99	155,01	7,36E+00	155,02	0,000040	0,000062
278,36					0,000000	0,000000
281,03	25671,66	1,55	1,32E+04	2,13	0,071441	0,001522
						-
295,17	-305,17	-104,72	-1,64E+02	104,73	-0,000888	0,000930
329,38						
330,70	3884,65	7,49	2,33E+03	7,63	0,012604	0,000962
343,73						
346,35	35544,21	1,02	2,21E+04	1,78	0,119784	0,002132
405,02	564,66	30,62	4,12E+02	30,66	0,002229	0,000684
437,50						
440,02	89972,52	0,42	7,17E+04	1,52	0,387892	0,005896
454,76	772,96	16,7	6,37E+02	16,76	0,003445	0,000577
505,33	57462,13	0,48	5,25E+04	1,54	0,284253	0,004377
528,96	240624,83	0,24	2,30E+05	1,48	1,240202	0,018355
538,54	65446,25	0,48	6,37E+04	1,53	0,343236	0,005252
556,05	464,05	15,4	4,68E+02	15,47	0,002535	0,000392
562,79	198,07	27,77	2,03E+02	27,81	0,001099	0,000306
578,26	450,46	33,13	474,5084	33,16	0,002557	0,000848
599,69	324,48	21,8	3,55E+02	21,84	0,001918	0,000419
610,05	31,27	131,95	3,47E+01	131,96	0,000188	0,000247
624,57	12548,35	1,15	1,43E+04	1,86	0,077197	0,001436
628,26					0,000000	0,000000
687,95	3757,20	2,55	4,68E+03	2,94	0,025346	0,000745
735,78	7161,77	1,25	9,40E+03	1,92	0,050885	0,000977
783,59	7016,89	1,29	9,69E+03	1,95	0,052452	0,001023
837,10	105,14	27,94	1,53E+02	27,98	0,000830	0,000232
877,52	100,38	27,63	1,54E+02	27,67	0,000834	0,000231
894,80	96,58	23,99	1,52E+02	24,03	0,000820	0,000197
909,12	143,73	17,34	2,29E+02	17,4	0,001236	0,000215
1036,63	83,38	23,11	1,48E+02	23,16	0,000800	0,000185
1068,12	84,96	26,64	1,55E+02	26,68	0,000840	0,000224

Os resultados experimentais para a probabilidade de emissão de raios gama (I_γ) por decaimento obtidos da média dos espectros registrados comparados com a literatura são apresentados na Tabela 5.13.

Tabela 5.13. Probabilidade de emissão de raio gama por decaimento

Transição	E(keV)	Literatura ^a	Este trabalho	Transição	E(keV)	Literatura ^a	Este trabalho
$\gamma_{1,0}$ (Te)	158,99	83,25(21)	83,36(22)	$\gamma_{10,2}$ (Te)	454,76	0,00412(22)	0,0033(2)
$\gamma_{13,10}$ (Te)	174,20	0,00083(25)	0,00098(5)	$\gamma_{4,0}$ (Te)	505,33	0,266(42)	0,281(5)
$\gamma_{6,4}$ (Te)	182,61	0,018(5)	0,015(6)	$\gamma_{6,1}$ (Te)	528,96	1,28(12)	1,245(24)
$\gamma_{7,4}$ (Te)	192,17	0,0199(7)	0,0162(7)	$\gamma_{7,1}$ (Te)	538,54	0,3788(43)	0,343(6)
$\gamma_{10,7}$ (Te)	197,22	0,00383(72)	0,0027(4) ^b	$\gamma_{11,2}$ (Te)	556,05	0,0029(3)	0,0024(2)
$\gamma_{6,3}$ (Te)	198,23	0,0035(7)		$\gamma_{13,4}$ (Te)	562,79	0,00115(7)	0,00088(13)
$\gamma_{10,6}$ (Te)	206,79	0,00442(86)	0,0038(4) ^c	$\gamma_{13,3}$ (Te)	578,26	0,00126(17)	0,0020(8)
$\gamma_{7,3}$ (Te)	207,80	0,00112(32)		$\gamma_{5,0}$ (Te)	599,69	0,00266(17)	0,0026(3)
$\gamma_{6,2}$ (Te)	247,96	0,0698(23)	0,0687(15)	$\gamma_{8,1}$ (Te)	610,05	0,0011(3)	<0,0001
$\gamma_{7,2}$ (Te)	257,51	0,0016(2)	0,00016(4)	$\gamma_{9,1}$ (Te)	624,57	0,0798(2)	0,0759(14) ^e
$\gamma_{9,4}$ (Te)	278,36	0,0023(4)		$\gamma_{13,2}$ (Te)	628,26	0,00164(14)	
$\gamma_{2,1}$ (Te)	281,03	0,0789(9)	0,0701(13)	$\gamma_{6,0}$ (Te)	687,95	0,0269(6)	0,0268(7)
$\gamma_{10,5}$ (Te)	295,17	0,001582(4)	<0,0007	$\gamma_{10,1}$ (Te)	735,78	0,0616(8)	0,0494(9)
$\gamma_{8,2}$ (Te)	329,38	0,0026(6)		$\gamma_{9,0}$ (Te)	783,59	0,0591(11)	0,0520(10)
$\gamma_{3,1}$ (Te)	330,70	0,01424(69)	0,0124(5) ^d	$\gamma_{11,1}$ (Te)	837,10	0,000582(8)	0,00041(11)
$\gamma_{9,2}$ (Te)	343,73	0,0044(3)		$\gamma_{12,1}$ (Te)	877,52	0,00083(7)	0,00071(9)
$\gamma_{4,1}$ (Te)	346,35	0,1257(9)	0,1183(21)	$\gamma_{10,0}$ (Te)	894,80	0,00101(7)	0,00068(7)
$\gamma_{10,3}$ (Te)	405,02	0,00298(23)	0,0026(3)	$\gamma_{13,1}$ (Te)	909,12	0,00141(8)	0,00128(9)
$\gamma_{12,5}$ (Te)	437,50	0,0007(7)		$\gamma_{12,0}$ (Te)	1036,63	0,00097(7)	0,00076(6)
$\gamma_{2,0}$ (Te)	440,02	0,4229(43)	0,387(7)	$\gamma_{13,0}$ (Te)	1068,12	0,00142(7)	0,00100(8)

a = Christé ⁽⁷⁾; b = soma (197,22+198,23 keV); c = soma (206,79+207,80 keV); d = soma (329,38 + 330,70 keV); e = soma (624,57+628,26 keV)

Algumas transições estavam muito próximas em energia de modo que não foi possível separá-las, por isso seus valores na tabela 5.8 correspondem a soma dos valores vizinhos. São elas: (197,22+198,23 keV); (206,79+207,80 keV); (329,38 + 330,70 keV) e (624,57+628,26 keV), indicadas pelas letras b, c, d e e.

Na tabela 5.14 são apresentados os valores dos coeficientes de conversão interna e das probabilidades de emissão gama por decaimento das transições gama para o nível fundamental do ^{123}Te utilizados para determinação da intensidade do gama de 159 keV.

Tabela 5.14. Valores dos coeficientes de conversão interna e das probabilidades de emissão gama por decaimento

Transição	E (keV)	α_T^a	$I_{\text{transição}} (\%)$	Incerteza
2-0	440,02	0,0121	0,3920	0,0067
4-0	505,34	0,0093	0,2838	0,049
5-0	599,69		0,00264	0,00029
6-0	687,95		0,0280	0,00069
9-0	783,62		0,05200	0,00099
10-0	894,80		0,00068	7,04E-05
12-0	1036,64		0,00076	6,34E-05
13-0	1068,18		0,001	7,55E-05
Total			0,7597	0,0084

a = Christé⁽⁷⁾

Na tabela 5.15 são apresentados os valores considerados para determinação da intensidade gama de 159 keV

Tabela 5.15. Valores utilizados para a determinação da intensidade do gama de 159 keV

	%	Erro
$I_{\text{transição 159 obtida da subtração (100-0,7597)}}$	99,241	0,008
α_T	0,1905	0,0032
I_γ (159 keV)	83,36	0,22
Erro %		0,27

O valor de 83,36 (22) para a transição do raio gama principal foi obtido por meio da equação 1.33, combinado com o valor experimental de α_T (159 keV), dada na Tabela 5.1. Este resultado está em boa concordância com a literatura: 83,25 (21)⁽⁷⁾.

A probabilidade de emissão de raios-gama por decaimento para a transição 159 keV obtido diretamente a partir do valor de atividade e das medições em espectrômetro HPGe é apresentado na tabela 5.15.

Como pode ser visto, o valor da intensidade gama obtida concorda com o valor obtido pelo método descrito no item 1.4, mas apresenta uma incerteza muito mais elevada, da ordem de 0,89%, uma vez que depende da incerteza na atividade como da incerteza da curva de eficiência, muito aquém da incerteza dos dados da literatura.

Os demais valores obtidos I_γ no presente trabalho estão de acordo com a literatura⁽⁷⁾ dentro de três desvios-padrão, corresponde as seguintes energias de raios gama: 174,20, 182,61, 197,22, 206,79, 247,96, 330,70, 346,35, 405,02, 454,76, 505,33, 528,96, 556,05, 562,79, 578,26, 599,69, 624,57, 687,95, 837,10, 877,52, 909,12 e 1036,63 keV. Alguns outros valores de I_γ não estão muito longe dos correspondentes obtidos da literatura, mas seus valores não estão de acordo, dentro do limite de desvio imposta. Os raios-gama correspondentes a 295,17 e 610,05 não foram observados, e na Tabela 5.13 temos um limite superior para as probabilidades de sua emissão.

O valor experimental obtido para a energia de 257,51 keV é exatamente uma ordem de grandeza maior se comparado ao valor encontrado na literatura.

A razão das discrepâncias nos onze valores restantes podem ser devidas à subtração da radiação de fundo e das distorções no espectro ocasionadas pelo efeito de empilhamento.

A principal contribuição na incerteza final é devida à subtração da radiação de fundo e da estatística de contagem.

Uma vez que os valores apresentados na tabela 5.13 são originários de medidas relativas de modo que a maioria das correções se cancela, não contribuindo para a incerteza total.

6. CONCLUSÕES

O resultado experimental da curva de extrapolação do ^{123}I , para a janela gama selecionada, concorda com a simulação de Monte Carlo dentro da incerteza experimental, indicando que a previsão teórica pode ser usada de forma confiável. A atividade específica da solução radioativa do ^{123}I foi obtida com boa precisão.

O coeficiente de conversão total para a transição principal (159 keV) foi obtido experimentalmente com boa precisão e concorda com a literatura dentro das incertezas. A probabilidade de raios gama por decaimento para esta transição concorda com a literatura dentro da incerteza experimental.

Vinte e um dos valores baixos de I_γ concorda com a literatura dentro de três desvios-padrão. Duas linhas gama não foram observadas e limites superiores para as suas intensidades foram analisadas. Os outros valores experimentais I_γ não concordam com a literatura, sugerindo que novas medidas podem ser necessárias para confirmar os resultados apresentados e verificar se o método utilizado é válido para medir a padronização do ^{123}I .

Uma sugestão para trabalho futuro é realizar um estudo comparativo entre o método tradicional e o método de aquisição de dados por software desenvolvido no laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN/SP cuja vantagem é necessidade de se realizar apenas uma única medida, sendo extremamente conveniente quando se deseja realizar a padronização de um radionuclídeo que possui um tempo de meia vida curta, como no caso do ^{123}I cuja meia vida é da ordem de 13 horas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. **LAVRAS, W. O.; KOSKINAS, M.F.; DIAS, M.S.; FONSECA, K.A.** Primary Standardization of ^{51}Cr Radioactive Solution. Recife, PE : V Regional Congress On Radiation Protection And Safety- Regional Irpa Congress - April 29 to May 04 2001, 2001.
2. **FERREIRA, CLÁUDIA RPP; KOSKINAS, M.F.; DIAS, M.S.** *Standardization of ^{45}Ca Radioactive Solution by Tracing Method.* São Paulo : s.n., 2004. pp. p. 939-941. Vol. v. 34.
3. **KOSKINAS, M.F.; PIRES, C.A.; YAMAZAKI, I.M.; SILVA, E.A.; DIAS, M.S.** *Standardization of ^{55}Fe by Tracing Method.* 2008. pp. p. 733-736. Vol. v. 66.
4. **KOSKINAS, M.F.; SILVA, E.A.; YAMAZAKI, I.M.; DIAS, M.S.** *Standardization of Am-241 Solution.* 2006. pp. p. 1238-1241. Vol. v. 64.
5. **POMMÉ, S.;** Methods for primary standardization of activity. *Metrologia* 44. 2007, pp. p. 17-26.
6. **SUMIYA, L. C. A.** Estudo de parâmetros relevantes na irradiação de Xe-124 , visando a otimização na obtenção de I-123 ultra puro no ciclotron Cyclone-30 do IPEN-CNEN/SP. São Paulo : Tese (Doutoramento) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 2006.
7. **CHRISTÉ, V.; BÉ, M. M.** BNM-LNHB. *Table de Radionucléide - BIPM.* 2004a. Vol. v. 5.
8. **MOREIRA, D.S.** PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS MULTI-EMISSIONES GAMA ^{166}mHo E ^{72}Ga E DETERMINAÇÃO DE SUAS INTENSIDADES GAMA POR DECAIMENTO. São Paulo, Tese de Doutorado : IPEN, 2005.
9. **HATTIE, M.; DIAS, M.S.; FONSECA, K.A.; KOSKINAS, M.F.** *Absolute Disintegration Rate Measurements of Ga-67 .* 1998. pp. p. 1173-1177. Vol. v. 49.

10. **NICHOLS, A.L.** *Nuclear Data Requirements for Decay Heat Calculation*. 2002. pp. 108 - 112.
11. **KNOLL, G.F.** *Radiation Detection and Measurement*. 2 ed. : Ed. New York, 1989.
12. **LEO, WILLIAM R.** *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. 1987.
13. **KAPLAN, I.** *Física Nuclear*. [trad.] Trad. José Goldemberg. 2ª edição. Rio de Janeiro : Guanabara dois, 1978.
14. **BOBIN, C.** Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. *Metrologia* 44-1. 2007, pp. p. 27 - 31.
15. **MOURA, L.P.** Método de coincidência generalizado para medida absoluta de atividade de radionuclídeos. Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do Tl-203. Campinas : Tese (Doutoramento) - Universidade de Campinas, 1969.
16. **BAERG, A.P.** *The efficiency extrapolation method in coincidence counting*. 1973. pp. p. 143 - 150. Vol. v. 112.
17. **CAMPION, P.J.** *The standardization of radioisotopes by the beta-gama coincidence method using high efficiency detectors*. 1959. pp. p. 232 - 248. Vol. 4.
18. **BAERG, A.P.** *Measurement of radioactive desitegration rate by the coincidence method*. 1966. pp. p. 23 - 32. Vol. 2.
19. **BROWNE, E.** *Calculated uncertainties of absolute γ -ray intensities and decay branching ratios from decay schemes*. 1986. pp. p. 461 - 467. Vol. v. A 249.
20. **CHRISTÉ, V.; BÉ, M.M.** 123I - Comments on evaluation of decay data. [Online] 2004b. [Citado em: 30 de 04 de 2012.] www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/I-123_com.pdf.
21. **HELENE, O.** *Método dos mínimos quadrados com formalismo matricial: Guia do usuário, Notas de aula*. São Paulo : Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2001.

22. **GERALDO, L.P., and SMITH, D.I.** *Least square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector.* São Paulo : Pub. IPEN 243, 1989.

23. **TAKEDA, M.N.** *Aplicação do método de Monte Carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexos em sistemas de coincidências $4\pi\beta\gamma$.* São Paulo : Tese de doutoramento, Universidade de São Paulo, 2006.

24. **REHER, D. et al.** *Standardization of ^{123}I .* 1984. p. p. 923. Vols. v. 35, No. 10.

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

26. **E.L. GRIGORESCU, SAHAGIA, M; RAZDOLESCU, A.; C. IVAN .** Standardization of some electron capture radionuclides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 369. 1996, pp. p. 414-420.

27. **SMITH, D.I.** *Some developments in the Cox-Isham theory to coincidence corrections, including the extension to the computer - discrimination method.* 1987. pp. p. 813 - 822. Vol. 38.

28. **CAMPION, P.J.** Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions. s.l. : Bureau International de Poids et Mesures, 1975.

29. **COX, D.R., ISHAM, V.A.** *A bivariate point process connected with electronic counters.* 1977. pp. p. 149 - 160. Vol. 356.

30. **SMITH, D.** *Improved correction formulae for coincidence counting.* 1978. p. 505. Vol. V. 152.

31. **DEBERTAN, K. e HELMER, R.G.** *Gamma and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors.* 1^o ed. Amsterdam : North Holland, 1988.

32. **DIAS, M.S.;** *CONTAC - Código para cálculo da atividade em sistemas de coincidências $4\pi\beta\gamma$.* s.l. : Laboratório de metrologia nuclear, IPEN. Relatório Interno, 1999.

33. **DIAS, M.S.** *Programa computacional LINFIT - Comunicação Pessoal*. 1997.
34. **RAMAN, S.;** *A Simple Method For Accurate Measurements Of Total Internal Conversion Coefficients*. 1972. pp. p. 407-409.
35. **OHYA, S.;** Nuclear Data Sheets for A = 123. *Nuclear Data Sheets*. 2004, pp. p. 547-718.
36. **LAVRAS, W. O.; KOSKINAS, M.F.; DIAS. M.S.** Primary Standardization of Sm-153 Radioactive Solution. Rio de Janeiro, National Meeting on Nuclear Applications VI ENAN, São Paulo: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 2002 : s.n., 2002. Vol. v. 1, pp. p. 1-1.
37. **SÓBOL, I.M.** *Método de Monte Carlo*. Moscou, Mir : s.n., 1976.
38. **KOSKINAS, M.F.** *Desenvolvimento de um sistema de coincidências para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície*. São Paulo : Tese (Doutoramento) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 1988.
39. **KOSKINAS, M.F.; FONSECA, K.A.; DIAS, M.S.** *Disintegration Rate Measurement of a Eu-152 Solution*. Grã-Bretanha : s.n., 2002. pp. p. 441-445. Vol. v. 56.
40. **BAERG, A.P.** *Variation on the paired source method of measuring dead time*. 1975. pp. p. 131 - 133.