

# **INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

## **APLICAÇÃO DO MÉTODO DE MONTE CARLO NO ESTUDO DA ATIVIDADE OBTIDA EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS $4\pi(\beta, EC)-\gamma$ PELO MÉTODO DA DISCRIMINAÇÃO COM REPOSIÇÃO**

**GUSTAVO POLILLO CORRÊA**

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

Orientador:

Dr. Mauro da Silva Dias

**Versão Corrigida**

**Versão Original se encontra disponível no IPEN**

**São Paulo**

**2015**

# **INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

## **APLICAÇÃO DO MÉTODO DE MONTE CARLO NO ESTUDO DA ATIVIDADE OBTIDA EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS $4\pi(\beta, EC)-\gamma$ PELO MÉTODO DA DISCRIMINAÇÃO COM REPOSIÇÃO**

**GUSTAVO POLILLO CORRÊA**

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

Orientador:

Dr. Mauro da Silva Dias

**Versão Corrigida**

**Versão Original se encontra disponível no IPEN**

**São Paulo**

**2015**

*Aos meus filhos Isabela, Augusto e Valentina,  
Porque a melhor forma de educar é dando o exemplo.*

## **Agradecimentos**

Ao professor Mauro da Silva Dias, orientador deste trabalho, pela paciência e dedicação durante esses dois anos e mais que isso, um amigo e conselheiro nos momentos de dificuldade;

Ao Dr. Frederico Antonio Genezini pelas críticas e sugestões que enriqueceram esse trabalho;

À minha esposa Luciana pelo apoio antes e durante o desenvolvimento deste trabalho;

Aos meus filhos Isabela, Augusto e Valentina que foram, sem dúvida, o núcleo de inspiração de todos os dias para iniciar e concluir este trabalho;

À minha mãe Olga que no momento mais crítico da minha graduação, quase desistindo de tudo, me aliviou as dores, me consolou, me levantou e me incentivou a chegar até aqui.

Ao meu pai Elcio que sempre, da sua maneira, desde pequeno ainda, me incentivava o gosto pelos estudos.

À minha irmã Débora pela demonstração de admiração sempre que me via estudar, o que me fazia estudar ainda mais para não decepcioná-la.

## RESUMO

O objetivo do presente trabalho foi o de estabelecer uma nova característica ao programa de Monte Carlo ESQUEMA, destinado a simular todo o processo de detecção em um sistema de coincidência  $4\pi(\beta,EC)-\gamma$  e possibilitou o conhecimento antecipado do comportamento da atividade aparente da fonte radioativa como função da eficiência do detector  $4\pi$ . Esta metodologia foi aplicada anteriormente para os casos onde a eficiência é variada pela colocação de absorvedores sobre a fonte radioativa ou variando-se o nível de discriminação eletrônica, com a exclusão completa das contagens abaixo deste nível. No presente trabalho, esta metodologia foi modificada com a inclusão dos eventos não coincidentes abaixo do nível de discriminação eletrônica, adotado para a via beta. Desta forma, a curva de extrapolação passa a ter um comportamento rigorosamente linear e o valor extrapolado corresponde a atividade da fonte radioativa, esperando-se obter uma melhor acurácia no seu valor. Esta alteração é inovadora e particularmente apropriada para ser aplicada ao caso de medidas com o Sistema de Coincidências por Software (SCS), desenvolvido recentemente pelo LMN. O trabalho consiste na modificação de um programa desenvolvido no LMN, denominado ESQUEMA, que leva em conta as características gerais de um esquema de desintegração complexo, incluindo-se os diversos tipos de transição, além das características experimentais do sistema de medidas por coincidência  $4\pi(\beta,EC)-\gamma$ . Estas modificações permitem a obtenção das curvas de extrapolação, aplicando-se o método proposto de Discriminação com Reposição. O software MCNP5 é usado para simular o transporte de radiação. A simulação de Monte Carlo é comparada com valores experimentais para o radionuclídeo padronizados no LMN, o <sup>111</sup>In .

## ABSTRACT

The aim of the present work is to establish a new feature to the Monte Carlo code ESQUEMA developed by the Nuclear Metrology Laboratory (LMN), in order to simulate the whole detection process in a  $4\pi$  ( $\beta$ ,EC)- $\gamma$  system and predict the behavior of radioactive source activity as a function of  $4\pi$  detector. The methodology was applied previously, when the efficiency is modified by adding absorbers over or under the radioactive source or modifying the electronic discrimination level by excluding all events below this level. In the present work, this methodology applying beta pulse height discrimination has been modified adding to the beta spectrum non-coincident events occurring below the lower level, which are cutted off by the conventional discrimination procedure. In this way, the extrapolation curve is modified obtaining straight line shape and the extrapolated value, corresponding to the radioactive source activity, is expected to achieve better accuracy. This feature is particularly suitable for measurements with the Software Coincidence System (SCS), recently developed at the LMN. The main goal of present work is to modify the software developed by the LMN team, called ESQUEMA where all the characteristics of a complex disintegration scheme are considered, including different kind of transitions and experimental features of  $4\pi$  ( $\beta$ ,EC)- $\gamma$  detection process. These changes allow to obtain the extrapolated value by the proposed method of Discrimination with Reposition. The software MCNP5 is used to simulate the radiation transport. The Monte Carlo simulation is compared to experimental results obtained for  $^{111}\text{In}$ , recently standardized by the LMN using the SCS and conventional extrapolation techniques.



## SUMÁRIO

<b>1. INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
<b>2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS</b>	<b>3</b>
2.1 Desintegração Radioativa	3
2.1.1 Desintegração $\alpha$	3
2.1.2 Desintegração $\beta$	4
2.1.3 Captura Eletrônica	5
2.1.4 Radiação gama - $\gamma$	6
2.1.5 Conversão Interna	7
2.1.6 Elétrons Auger	8
2.1.7 Raios-X	8
2.2 Interação da radiação com a matéria	9
2.2.1 Efeito Fotoelétrico	10
2.2.2 Efeito Compton	10
2.2.3 Produção de Pares	11
2.3 O Método de Monte Carlo	13
2.3.1 Geração de Números Aleatórios	14
2.3.2 Qualidade do Gerador de Números Aleatórios	14
2.3.3 Gerador de Números Aleatórios do Fortran	15
2.3.4 Performance do GNU Fortran	15
2.4 Programa ESQUEMA	16
2.5 Metodologia de Cálculo	
2.5.1 Método de Coincidência $4\pi(\beta, EC)-\gamma$	19
2.5.2 Método dos Absorvedores	23
2.5.3 Método por Discriminação Convencional ou por Hardware	24
2.5.4 Método por Discriminação por Software(SCS)	24
<b>3. METODOLOGIA</b>	
3.1 Método por Discriminação com Reposição (DR)	25
3.2 Aplicação para o $^{111}\text{In}$	26
3.3 Simulação pelo Método de Monte Carlo	30
3.4 Cálculo de Funções-Resposta	33
<b>4. PROCESSAMENTO DE DADOS</b>	
4.1 Programa Esquema	34
4.2 Programa SCTAC	34



4.3 Programa LINFIT	35
4.4 Aplicação da Discriminação om Reposição (DR)	
4.4.1 Método 1 – Ajuste da Curva de Extrapolação com Absorvedores	36
4.4.2 Método 2 – Uso da inclinação calculada pelo código ESQUEMA	36
4.4.3 Método 3 – Uso do Fator de Normalização $f_k$ calculado por ESQUEMA	37
4.4.4 Método 4 – Uso do Fator de Normalização $f_k$ como parâmetro livre	37
<b>5. RESULTADOS E DISCUSSÃO</b>	<b>38</b>
5.1 Método 1	46
5.2 Método 2	48
5.3 Método 3	49
5.4 Método 4	50
<b>6. CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS FUTURAS</b>	<b>52</b>
<b>7. REFERÊNCIAS</b>	<b>53</b>
<b>8. APÊNDICE</b>	
A. Apêndice A	58
B. Apêndice B	60
C. Apêndice C	64

## 1 INTRODUÇÃO

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN tem usado o sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  para obtenção da atividade de radionuclídeos desde sua fundação em 1964. Este método baseia-se em medidas experimentais das taxas de contagens  $\beta$ ,  $\gamma$  e de coincidência, oferecendo uma maneira prática e confiável de obtenção da atividade. [1-10]

O LMN do IPEN tem publicado diversos trabalhos nesta área [10-14] e participado de diversas padronizações e comparações internacionais, demonstrando a confiabilidade do método, [15-26]. O arranjo experimental do sistema  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  baseia-se em um detector proporcional em geometria  $4\pi$ , a gás fluente ou pressurizado, utilizado para detecção de partículas alfa, beta, raios-X ou elétrons, além de um ou dois espectrômetros para a detecção da radiação gama, podendo ser constituídos por detectores cintiladores ou cristais semicondutores.

A aplicação do método de Coincidência consiste em variar-se a eficiência beta em função das contagens, o que pode ser feito pelo LMN de três maneiras distintas: a primeira é usar absorvedores na própria amostra. Sua desvantagem é a perda da amostra, em razão da adição dos absorvedores e o enorme tempo gasto para realizar o experimento. A segunda maneira é usar discriminação eletrônica convencional (ou por hardware), onde o tempo gasto é semelhante ao caso do método dos absorvedores, uma vez que a medida é repetida para cada nível de discriminação. Nestes dois casos, o sistema de aquisição de dados se faz por módulos eletrônicos convencionais, associados a um módulo conversor de tempo em altura de pulso (TAC), denominado sistema TAC [25,27].

O terceiro método é o Sistema de Coincidência por Software (SCS) [28-29], que permite o registro das amplitudes e instantes de ocorrência de todos os pulsos gerados por cada uma das vias do sistema de coincidência  $4\pi(\beta,EC)\text{-}\gamma$ , possibilitando a análise dos dados a posteriori e a variação de diversas condições de medida, tais como: intervalo de amplitudes de pulso e tempo morto, que podem ser estabelecidos por *software*. Outra vantagem é a rápida aquisição dos dados, comparada aos métodos anteriores. Atualmente, o LMN usa o método dos absorvedores e discriminação eletrônica, associados ao sistema TAC ou SCS. Em geral, a atividade da fonte é obtida pelo Método da Extrapolação Linear [6] em ambos os casos.

Desde 2005, o LMN aplica o Método de Monte Carlo para simular o método de coincidências  $4\pi(\beta, EC)-\gamma$ , por meio do código chamado ESQUEMA [30-31]. Este programa tem sido aplicado a diversos radionuclídeos, utilizando-se os métodos de variação da eficiência beta por meio de absorvedores colocados na fonte radioativa ou por variação nos níveis de discriminação eletrônico da via beta [27, 30-35]. O programa ESQUEMA tem sido aperfeiçoado nos últimos anos, para que pudesse ser aplicado a uma variedade maior de radionuclídeos que possuem um esquema de desintegração com especificidades não consideradas nas versões anteriores do programa [36].

No presente trabalho, uma nova metodologia de variação na eficiência beta é proposta, denominada: **Discriminação com Reposição (DR)**. Esta metodologia baseia-se na discriminação eletrônica da via beta convencional, porém excluindo-se apenas os eventos coincidentes e mantendo-se inalterados os eventos não coincidentes.

## 2. Fundamentos Teóricos

O termo “radiação” foi utilizado para descrever apenas as ondas eletromagnéticas até aproximadamente os anos de 1900. Com o começo do novo século, a descoberta dos elétrons, Raios-X e a radioatividade natural foram também incorporadas na palavra “radiação” o que a tornou não somente as características da radiação eletromagnética mas também as características das partículas. Com a teoria da dualidade onda-partícula de De Broglie e comprovada através dos experimentos de difração de elétrons, a distinção entre onda e partícula deixou de ser importante no conceito de radiação e hoje o termo é dividido em duas categorias, uma é a radiação ionizante, capaz de ionizar um átomo ou molécula no meio em que atravesse. No grupo das radiações ionizantes podem-se incluir os Raios-X e os raios gama. Consideram-se partículas atômicas e subatômicas as que podem ionizar diretamente o meio: os elétrons, pósitrons, prótons, partículas alfas, íons pesados e mésons. A segunda categoria é a da radiação não ionizante, composta por radiações eletromagnéticas com comprimento de ondas acima de 10 nm.

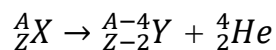
### 2.1 Desintegração Radioativa

A radioatividade é um fenômeno natural pelo qual algumas substâncias ou elementos químicos são capazes de emitir radiações, essas radiações são particularmente  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  e Raio-X. Sua unidade de medida definida pelo Sistema Internacional é o Becquerel (Bq) que é equivalente a 1 desintegração por segundo.

#### 2.1.1 Desintegração $\alpha$

A partícula alfa foi um dos primeiros tipos de radiação a serem identificados e foi Rutherford quem em 1899 descobriu a desintegração alfa, em seu trabalho com os “raios de Becquerel” usando sais de urânio [38].

O decaimento alfa pode ser escrito da forma [38]:



onde o núcleo do  ${}^4_2He^{++} = \alpha$  e é chamada de partícula alfa.

Há apenas dois produtos no decaimento alfa, o novo núcleo formado e a própria partícula alfa. A energia total liberada é determinada pela diferença de massa  $\Delta m$  do elemento X e (Y +  $\alpha$ ) e

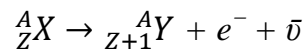
pode ser calculada através da relação massa-energia de Einstein [38].

$$E = c^2 \Delta m$$

### 2.1.2 Desintegração $\beta$

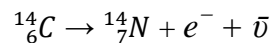
As partículas beta também foram identificadas primeiramente por Rutherford em 1899 como o componente mais penetrante dos raios de Bequerel. A penetração dessas partículas na matéria é da ordem de alguns milímetros em sólidos e de cerca alguns metros no ar.

Essas partículas são elétrons rápidos e o processo pode ser descrito como [38]:



onde  $X$  é o radioisótopo inicial,  $Y$  é o radioisótopo final após o processo,  $e^-$  é o elétron rápido e  $\bar{\nu}$  é chamado de antineutrino. Considera-se que o antineutrino possua pouca ou nenhuma massa, não possui carga elétrica e praticamente não interage com a matéria.

Abaixo é mostrado um exemplo de decaimento beta [38]:



A energia total de decaimento é determinada pela diferença de massa do isótopo  $X$  e ( $Y + e^-$ ), que pode ser descrito como [38]:

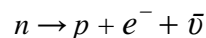
$$E_T = c^2 \Delta m$$

onde  $c$  é a velocidade da luz no vácuo.

Considerando-se que a massa do elétron é quase 2000 vezes menor que a massa do próton ou nêutron e que a massa do antineutrino é considerada nula neste caso, conclui-se que a energia de recuo do núcleo é muito pequena.

O espectro do decaimento beta é contínuo e foi com a intenção de explicar esse comportamento que Pauli em 1930 sugeriu que existisse no processo de decaimento beta uma partícula eletricamente neutra, denominada antineutrino.

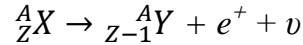
O decaimento beta descrito acima faz com que um nêutron, que está no núcleo do radioisótopo, se converta em um próton através de um processo exotérmico (libera energia) [38]:



Para este tipo de processo dá-se o nome de **decaimento  $\beta^-$**  pois tem como parte do resultado um elétron. A liberação de energia ocorre porque a massa do nêutron é maior que a massa combinada do próton com o elétron.

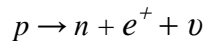
Este tipo de processo ocorre para isótopos que possuem excesso de nêutrons em seu núcleo, por outro lado, para radioisótopos que possuem excesso de prótons, o processo é inverso, onde um

próton converte-se em um nêutron. Este processo é mostrado abaixo [38]:



onde  $e^+$  é o pósitron, que tem suas características iguais as do elétron, porém com carga elétrica positiva e é também chamado de antipartícula do elétron,  $\nu$  é chamado de neutrino e sua antipartícula é o antineutrino, já discutido anteriormente. A emissão de pósitrons não ocorre de forma natural e só foi descobertoa durante os estudos da radiatividade artificial por Joliot-Curie em 1934 [38].

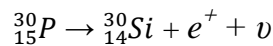
De forma análoga ao decaimento  $\beta^-$  podemos escrever o processo interno ao núcleo correspondente ao decaimento  $\beta^+$  como um processo endotérmico (absorve energia) dado por [38]:



Para este tipo de processo dá-se o nome de **decaimento  $\beta^+$** , pois tem como parte do resultado um pósitron. A energia requerida para que a reação ocorra vem do reagrupamento da estrutura do núcleo, pois a massa do próton é menor que a massa combinada do nêutron e o pósitron.

O decaimento  $\beta^+$  também produz emissão de radiação gama, pois o pósitron interage com um dos elétrons dos átomos do meio, dando origem, na maior parte das vezes, a dois fótons de aniquilação, com energia de 511 keV cada um.

Como exemplo de decaimento  $\beta^+$ , temos [38]:

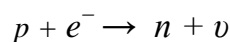


Com meia vida de 150 segundos.

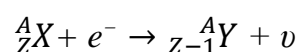
Há casos em que um radioisótopo pode emitir tanto elétrons como pósitrons em um decaimento beta. É o caso, por exemplo, do  ${}^{64}_{29}Cu$  [38].

### 2.1.3 Captura Eletrônica

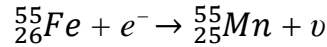
Outro processo que pode ocorrer envolvendo o núcleo é a captura eletrônica, onde este núcleo captura um elétron, geralmente da órbita mais próxima, e tem como resultado um nêutron e a emissão de um neutrino. A equação deste processo é mostrada abaixo, de forma simplificada [38]:



Uma forma mais completa, envolvendo os núcleos, pode ser dada por [38]:



Um exemplo de processo de captura eletrônica pode ser dado por [38]:



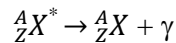
Quando o elétron é capturado pelo núcleo no processo de captura eletrônica (EC), surge uma vacância do elétron capturado, que é preenchida pelo elétron de camadas mais externas. Considerando-se que o elétron capturado foi da camada K e que o elétron da camada L foi o que preencheu sua vacância, a diferença de energia de ligação do elétron da camada K e L pode ser emitida em forma de Raio-X K ou também chamada de radiação fluorescente. Essa energia também pode ser dada a outro elétron, por exemplo, da camada L, denominado elétron Auger e emitido com energia cinética igual a [39]:

$$E_{cA} = E_{LK} - 2 E_{LL}$$

onde  $E_{cA}$  é a energia cinética do elétron Auger emitido,  $E_{LK}$  é a energia de ligação do elétron da camada K e  $E_{LL}$  é a energia de ligação do elétron da camada L.

#### 2.1.4 Radiação gama - $\gamma$

Os raios gama foram descobertos por Villard em 1900. O núcleo vai de um estado excitado para um estado de energia mais baixa e a diferença de energia entre os dois estados é liberada na forma de um fóton. O decaimento gama pode ser representado por [38]:



onde  ${}^A_ZX^*$  representa o núcleo excitado; não há qualquer alteração no núcleo após o processo, exceto a redução na energia interna.

O tempo de vida de um decaimento gama, isto é, a vida média de um estado excitado é, em geral, muito curta, da ordem de  $10^{-15}$  a  $10^{-9}$  segundos. A produção de raios gama é geralmente obtida após um decaimento alfa ou beta. Por exemplo, o  ${}^{238}_{92}\text{U}$  decai por emissão alfa para o estado fundamental do  ${}^{234}_{90}\text{Th}$  em 77% dos casos e os 23% restantes do processo de decaimento vão para um estado excitado do  ${}^{234}_{90}\text{Th}$ , o qual decai rapidamente para o estado fundamental emitindo um raio gama de 49 keV [38].

Outras fontes de emissão de raios gama podem ser por meio de processo de fissão nuclear, reações nucleares induzidas e também pelo processo de aniquilação de pósitrons na matéria.

Algumas vezes a energia de excitação do núcleo pode ser liberada pela emissão de um elétron em lugar de um fóton. Esta transição nuclear é chamada de conversão interna e o elétron ejetado é chamado de elétron de conversão interna, conforme descrito a seguir.

### 2.1.5 Conversão Interna

Conversão interna é um processo alternativo do núcleo excitado para liberar seu excesso de energia. Embora a conversão interna tenha uma relação muito próxima à emissão gama, no caso do núcleo excitado, ao invés de emitir uma radiação gama, com energia aproximadamente igual a diferença entre os dois estados, essa energia é transferida a um dos elétrons mais próximos do núcleo, principalmente da camada K, fazendo com que o mesmo seja ejetado com uma energia igual a diferença entre a energia fornecida pelo núcleo e sua energia de ligação. Chamando de  $E_B = E_K, E_L, E_M$  etc, as energias de ligação das camadas K, L e M, respectivamente, a energia que o elétron tem ao ser ejetado será  $E_e = E_\gamma - E_B$ . [38]

O coeficiente de conversão interna ( $\alpha$ ) corresponde à razão de probabilidades de emissão de elétrons de conversão ( $I_e$ ) e gamas ( $I_\gamma$ ), para uma determinada transição:

$$\alpha = \frac{I_e}{I_\gamma}$$

Considerando a intensidade total da transição gama:  $I_T = I_e + I_\gamma$ , tem-se:

$$I_e = \frac{\alpha}{1 + \alpha} I_T$$

A conversão interna e a emissão de raios gama ocorrem na mesma fonte, e são processos mutuamente exclusivos. Em geral, a conversão interna possui maior chance de ocorrer em transições gama de baixa energia na ordem de 100 keV ou menos e em núcleos pesados. Em energias próximas de 1 MeV, por exemplo, a conversão interna é muito improvável de ocorrer.

Após o elétron ser emitido, a vacância criada é preenchida por outro elétron de camadas mais externas ao núcleo, resultando em emissão de raios-X. Radioisótopos que produzem conversão interna são fontes de elétrons monoenergéticos, por exemplo,  $^{113}\text{Cs}$  e  $^{207}\text{Bi}$ . [39]

### 2.1.6 Elétrons Auger



O processo de produção de elétrons Auger é muito parecido com o de elétrons de conversão, porém, no caso dos elétrons Auger, a energia transferida ao elétron vem das camadas eletrônicas do átomo e não do núcleo. O elétron por meio do qual é transferida a energia é ejetado do átomo com energia  $E_e = E_A - E_B$  onde  $E_A$  nesse caso é a energia que o átomo transfere ao elétron e  $E_B$  é a energia de ligação do elétrons na camada correspondente  $K, L, M$  etc.

O espectro de energia dos elétrons Auger é discreto e, quando comparada com a energia das partículas beta, é considerada baixa. A vacância deixada por esse elétron é preenchida por outro elétron da camada mais externa com respectiva emissão de raio-X. Elementos com baixo número atômico são mais prováveis de emitir elétrons Auger, em razão da sua baixa energia de ligação.

### 2.1.7 Raios-X

O método de produção de raio-X mais conhecido é através do preenchimento de uma vacância na camada orbital de um núcleo por um elétron, onde essa vacância foi ocasionada devido a um processo de excitação do mesmo. Na experiência de Röntgen em 1895, a excitação veio da aceleração de elétrons em um tubo catódico, no entanto essa excitação pode vir de radiações externas como partículas alfas, decaimentos beta, feixes de elétrons, emissões gama e até mesmo outras fontes de raios-X.

A energia do raio-X depende da diferença de energia entre as duas camadas inicial e final do processo. Um elétron que sai da camada  $L$  e preencha a camada  $K$ , é chamado de Raio-X  $K_\alpha$  e tem sua energia como a diferença entre as energias de ligação das camadas  $L$  e  $K$ . No caso da vacância na camada  $K$  ser preenchida por um elétron da camada  $M$ , sua energia será a diferença entre as energias de ligação das camadas  $M$  e  $K$ , e assim sucessivamente.

As energias dependem do elemento considerado, por exemplo: para a energia de ligação da camada  $K$  do Sódio ( $Z=11$ ), tem-se uma energia de 1 keV aproximadamente, e para o Urânio ( $Z=92$ ) uma energia de 116 keV. Deste modo, a energia dos raios-X provenientes de transições eletrônicas do átomo é da ordem de  $10^2 - 10^5$  eV [38].

Os raios-X podem ser produzidos por alguns processos de decaimento, como captura eletrônica, onde o núcleo captura um elétron, deixando uma vacância para ser preenchida; conversão interna, proveniente de emissão de raios gama em decaimentos alfa e beta, que podem produzir emissões gama também. Contudo, outras formas de se obter os raios-X podem ser usadas, tais como: pela aceleração de um feixe de elétrons contra um alvo, como fez Röntgen em seu experimento ou através de radiação Síncrotron, emitindo-se um feixe de elétrons rápidos e estes

defletidos por um campo magnético.

Um das fontes mais conhecidas de produção de Raio-X é denominada *Bremsstrahlung* que consiste na radiação eletromagnética cuja origem vem da desaceleração de partículas carregadas ao colidirem contra um alvo material e essas partículas são defletidas do seu caminho retilíneo, em razão da ação do campo elétrico dos átomos do material sobre as partículas. Esse freamento da partícula causa perda de sua energia, seguida de emissão de radiação eletromagnética. A partícula mais provável de produzir o *Bremsstrahlung* é o elétron, pois sua massa é muito pequena e, portanto mais fácil de ser desviada ou freada.

A obtenção de raio-X por *Bremsstrahlung* também é chamada de Raio-X convencional e a obtenção de raio-X por processos de excitação é chamada de Raio-X característico. Para um átomo em estado excitado, o processo de ejeção de um elétron Auger compete com o processo de emissão de raio-X característico.

## **2.2 Interação da radiação com a matéria**

O estudo da radiação ionizante com a matéria é de grande importância, pois a detecção da radiação é baseada na energia depositada no material no qual o detector é constituído. Considerando-se o tipo de radiação, bem como suas interações no meio material, pode-se dividir este estudo em 3 categorias:

1. Partículas carregadas: elétrons, pósitrons, prótons, deutério, alfas, íons pesados ( $A > 4$ )
2. Fótons: Raios gama e Raios-X
3. Nêutrons

Para o estudo de partículas carregadas no meio material, pode dividir-se ainda em:

1. Interações coulombianas com elétrons e o núcleo;
2. Por emissão de radiação eletromagnética (*Bremsstrahlung*);
3. Interações nucleares;
4. Por emissão de radiação de Cherenkov .

Para este trabalho, serão discutidas apenas interações coulombianas, *Bremsstrahlung* e interação dos fótons na matéria, considerando-se o Efeito Fotoelétrico, Efeito Compton e Produção

de Pares.

### 2.2.1 Efeito Fotoelétrico

Fótons são radiações eletromagnéticas e incluem-se nessas radiações os raios gama e os raios-X. Não possuem massa e nem carga elétrica e viajam no vácuo com a velocidade da luz, chamada de  $c$ . A relação entre a energia de um fóton  $E$  com sua frequência  $\nu$  e comprimento de onda  $\lambda$  é dada por:

$$E = h\nu = h \frac{c}{\lambda}$$

Onde  $h$  é a constante de Planck igual a  $4,135 \times 10^{-15}$  eV. s [37]

Raios-X são geralmente produzidos por transições atômicas como excitação e ionização, já os raios gama são emitidos por transições nucleares. Os raios-X também podem ser produzidos por Bremsstrahlung por meio da aceleração ou desaceleração de partículas carregadas. Raios-X e raios gama emitidos por átomos e núcleos possuem espectro discreto, já por Bremsstrahlung, o espectro de energia é contínuo.

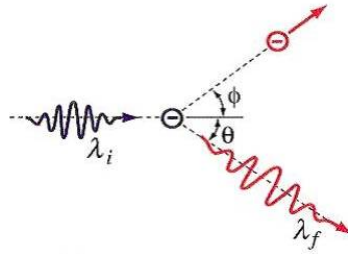
O efeito fotoelétrico é a interação de um fóton com um elétron ligado, resultando dessa interação a ejeção do elétron e o desaparecimento do fóton. A energia cinética do elétron é a diferença entre a energia do fóton e a energia de ligação do elétron. Este processo também é chamado de absorção fotoelétrica. Com essa vacância, outro elétron pode preencher a camada emitindo dessa forma raio-X característico. Em alguns casos, a emissão de um elétron Auger pode tomar lugar à emissão do raio-X.

A probabilidade do efeito fotoelétrico ocorrer é diretamente proporcional à potência 4 ou 5 do número atômico do absorvedor.

### 2.2.2 Efeito Compton

Assim como no efeito fotoelétrico, o efeito Compton é a colisão de um fóton com um elétron, porém quando este é considerado livre. A energia de um fóton, da ordem de keV, é muitas vezes superior que a energia de ligação de um elétron das camadas mais externas, que é da ordem de eV; por isso, o elétron é considerado livre, uma vez que a energia que o mantém ligado ao átomo é pequena em relação a energia do fóton. Nesse caso, o fóton não desaparece, o elétron é

ejetado do átomo e recebe parte da energia do fóton incidente (Figura 2.1).



**Figura 2.1:** Esquema do Efeito Compton [37].

A energia da radiação para a qual o efeito Compton é dominante, está em uma faixa intermediária. A energia do fóton resultante após a colisão é dada por [37]:

$$E_f = \frac{hv}{1 + \frac{hv}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)}$$

A energia cinética do elétron de recuo é dada por [37]:

$$E_e^- = hv - E_f = hv \left( 1 - \frac{1}{1 + \frac{hv}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \right)$$

A probabilidade de ocorrer espalhamento Compton é quase independente do número atômico do material onde a radiação é incidente. No efeito Compton, a densidade de elétrons disponíveis no meio é o que define a probabilidade de ocorrência do espalhamento.

### 2.2.3 Produção de Pares

A produção de pares é a interação entre um fóton e um núcleo. Como resultado dessa interação, o fóton desaparece, o núcleo não sofre qualquer mudança e um par elétron-pósitron é criado. Pela lei da conservação da energia, temos a energia cinética do elétron e do pósitron [39]:

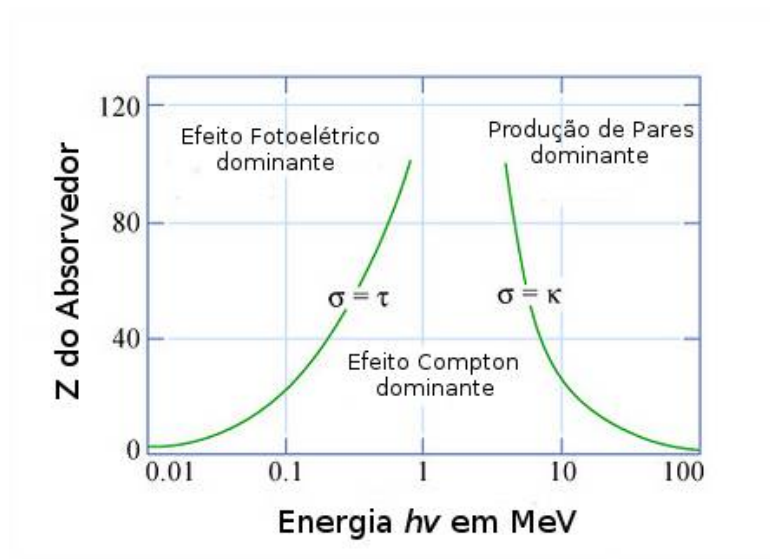
$$E_e^- + E_e^+ = E_\gamma - (mc^2)_e^- - (mc^2)_e^+ = E_\gamma - 1,022 \text{ MeV}$$

Com isso mostra-se que para a produção de pares é necessário que o fóton incidente tenha pelo menos duas vezes a energia de repouso do elétron; portanto pela equação acima, temos que a energia cinética média do elétron ou do pósitron é dada por [39]:

$$E_e^- = E_e^+ = \frac{1}{2} (E_\gamma - 1,022 \text{ MeV})$$

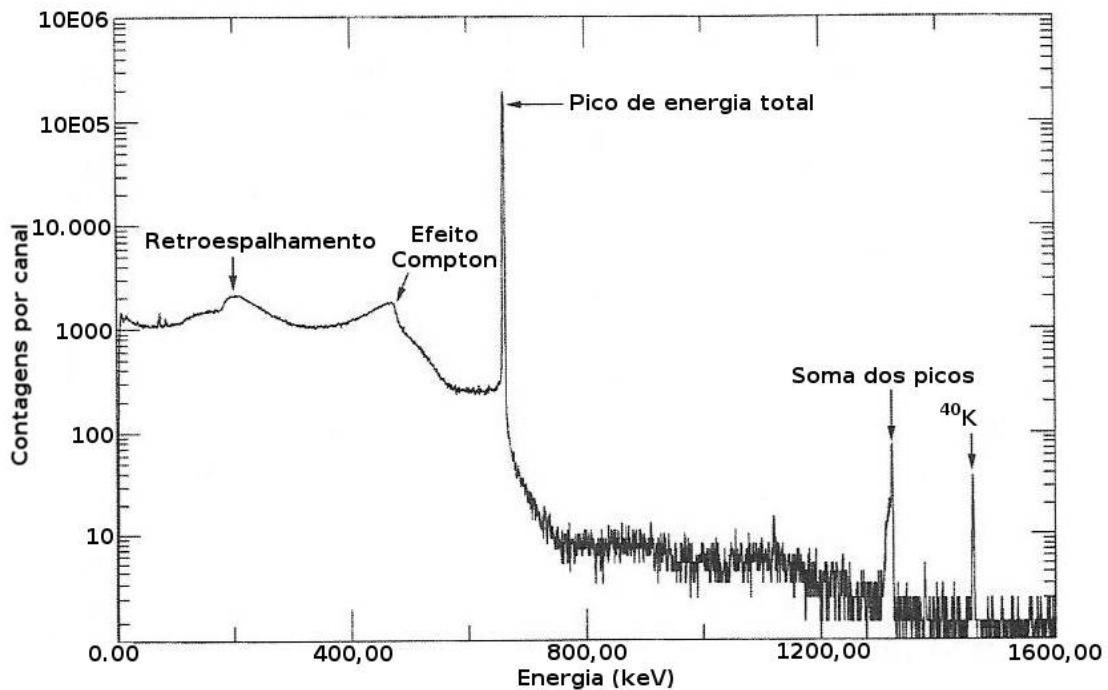
A probabilidade de ocorrência da produção de pares varia com o quadrado do número atômico do absorvedor.

Na figura 2.2 são ilustradas as três principais interações dos fótons com a matéria.



**Figura 2.2:** As três principais interações dos fótons com a matéria – Efeito fotoelétrico, Efeito Compton e Produção de pares [37].

Na figura 2.3 é apresentado o espectro do  $^{137}\text{Cs}$  onde pode-se notar o pico de absorção total de energia. Outras estruturas do espectro também são apresentadas nesta figura.



**Figura 2.3:** Espectro de uma fonte de  $^{137}\text{Cs}$  emitindo raios gama a 662 keV mostrando os efeitos do pico de absorção fotoelétrico e espalhamento Compton. Na figura ainda nota-se o pico de retroespalhamento, efeito Compton, o pico de absorção total de energia, uma pequena soma de picos é evidenciada assim como um pico de 1460 keV relativo à radiação gama de fundo do  $^{40}\text{K}$ . [37]

### 2.3 O Método de Monte Carlo

O Método de Monte Carlo é o método numérico para solucionar problemas por meio de números aleatórios ou variáveis aleatórias.

Este método já era aplicado em sua essência, ou seja, usavam-se números aleatórios para simular outros problemas de física, no começo do século XX. O método foi usado para analisar a equação de Boltzman [40]. Em 1908 Student usou o método para estimar os coeficientes de correlação da sua famosa “tabela t de Student”. Na década de 1930, Enrico Fermi fez experimentos numéricos para entender como uma partícula sem carga, o nêutron recém-descoberto, interagia com a matéria condensada [41]. Isso proporcionou um grande desenvolvimento teórico da difusão e transporte de nêutrons.

O Método de Monte Carlo foi usado como método científico no desenvolvimento da bomba atômica durante a Segunda Guerra Mundial. O trabalho envolveu a simulação direta da difusão de

nêutrons em material físsil [42]. A possibilidade de usar o Método em problemas determinísticos foi relatado por Enrico Fermi, von Neumann and Ulam nos anos seguintes do final da Segunda Guerra Mundial. Ainda em meados de 1948, Fermi, Neumann, Ulam e Metropolis usaram o Método de Monte Carlo para estimar os auto-valores da equação de Schrödinger [42]. Em 1949 este método foi lançado em livro por John von Neuman e Stanislav Ulam, com o título “The Monte Carlo Method”. Naquela época, usar o método de Monte Carlo nos computadores era um trabalho exaustivo e que dispendia muito tempo.

A dependência direta do Método de Monte Carlo com números aleatórios criou a preocupação e posterior pesquisa sobre o assunto, pois a forma como são gerados os números aleatórios e a sua qualidade interferem diretamente no resultado do Método.

### **2.3.1 Geração de Números Aleatórios**

Em 1948, em um simpósio sobre o Método de Monte Carlo, foi apresentado um trabalho sobre a atenuação de nêutrons onde foram executadas 10.000 histórias, sendo que o computador utilizado levava 8 horas para executar cerca de 400 histórias. Utilizando-se a tecnologia usada na época, foram utilizados cerca de 2.500.000 cartões perfurados [43]. Isso mostra que o Método de Monte Carlo, naquela época, tinha um custo elevado, em termos de tempo e trabalho.

Um dos autores do Método de Monte Carlo, J. Neumann desenvolveu o primeiro algoritmo para simular ou criar números aleatórios através do computador, chamado de método de “mid-square” [44], era baseado em um número de 4 algarismos, calculava-se seu quadrado, resultando em um número com 8 algarismos e desse, extraía-se os 4 algarismos do meio, por exemplo:  $5996^2 = 35952016$ , deste número extraía-se o número 9520 e daí executava-se a operação novamente.

Qualquer número aleatório que não tenha sua fonte como natural, por exemplo, simulado em um computador por meio de qualquer algoritmo, dá-se o nome de Gerador de Números Pseudo-Aleatórios. Nos dias de hoje, todos os eventos que usam números aleatórios em de um computador, usam números pseudo-aleatórios. Diversos algoritmos foram desenvolvidos desde Neumann e sua qualidade é essencial para se usar o Método.

### **2.3.2 Qualidade do Gerador de Números Aleatórios**

Um bom gerador de números aleatórios deve ter uniformidade e grande período, pois quanto

mais uniforme for a distribuição dos números aleatórios, maior será a confiabilidade dos resultados; quanto maior o período do gerador, maior poderá ser o número de histórias utilizado no processo e quanto maior o número de histórias maior será a acurácia do valor estimado.

### **2.3.3 Gerador de Números Aleatórios do Fortran**

O Gerador de números pseudo-aleatórios depende de cada linguagem de programação. No presente trabalho foi utilizada a linguagem Fortran 95, por dois principais motivos: primeiro, porque o programa ESQUEMA foi escrito inicialmente e modificado na linguagem Fortran e segundo, porque o gerador de números pseudo-aleatórios possui ótima qualidade para o trabalho proposto.

O programa ESQUEMA foi compilado no sistema operacional Linux com arquitetura de 64 bits, o compilador usado foi o GNU gfortran, software de código livre e gratuito para uso. Segundo sua documentação oficial [45], seu período é de  $2^{32}$  o que resulta em mais de 4 bilhões de números aleatórios antes que a mesma sequência comece a se repetir. No programa ESQUEMA foram utilizadas  $10^8$  histórias, ou seja, foram executadas 100 milhões de simulações o que é bem inferior ao limite do gerador. As funções usadas no código ESQUEMA para gerar os números foram:

- RANDOM\_SEED – Para inicializar o gerador de números pseudo-aleatórios
- RANDOM\_NUMBER – Gerador de números pseudo-aleatórios

### **2.3.4 Performance do GNU Fortran**

Para se obter uma incerteza estatística razoável, foi necessário executar um número elevado de simulações, também chamado de “histórias” para o Programa ESQUEMA. Neste trabalho, considerou-se o número  $10^8$  histórias o suficiente para obter-se bons resultados. O tempo médio para o programa ESQUEMA executar  $10^8$  histórias no compilador GNU Fortran para Linux 64 bits em um processador Intel Core 2 Duo de 2.1 GHz com 4 GB de memória RAM foi de 8 minutos, um valor excelente comparado com o tempo em um compilador Fortran para Windows – Microsoft Fortran PowerStation Version 4.0, compilado em ambiente do Microsoft Developer Studio, em mesmo hardware, que foi cerca de 5 horas.



## 2.4 Programa ESQUEMA

Desde 2005, o Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), no IPEN tem aplicado o código de Monte Carlo ESQUEMA [25], [29-31], [33-34], [36] para prever a curva de extrapolação obtida com sistemas de coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC}), \gamma$ . Nesse código, todos os detalhes do sistema de detecção são modelados e as curvas de resposta para elétrons, pósitrons, raios-X e raios gama são calculadas por um código de transporte de radiação, como MCNP [46-47] ou PENELOPE [48-49]. Todos estes dados são introduzidos no código ESQUEMA que acompanha todas as emissões de radiação presentes no esquema de decaimento, desde o radionuclídeo precursor até o estado fundamental do radionuclídeo filho. Como resultado, os espectros produzidos por essas radiações nos canais beta e gama podem ser calculados e utilizados para produzir a curva de extrapolação e a atividade resultante da fonte radioativa. Desde a primeira versão [30], [31] várias melhorias foram implementadas, a fim de tornar o código adequado para diferentes tipos de radionuclídeos, como:  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ , etc. Estas melhorias são descritas na literatura [36].

As contagens da via beta, gama e coincidência podem ser obtidas através do Método de Monte Carlo. Para determinar as tabelas de resposta em eficiência e energia depositada, para fótons e elétrons foi utilizado o código MCNP5 – Monte Carlo N-Particle Transport Code System [46], que realiza simulações para elétrons, pósitrons, fótons e nêutrons. O MCNP5 incorpora o código MCNPX, que é mais específico para elétrons, pósitrons e fótons. Este é o código que foi utilizado no presente trabalho. Para efetuar o cálculo, o MCNPX usa como dados de entrada: as especificações da fonte radioativa, materiais e geometrias de todos os componentes do sistema de coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$ . Usando o Método de Monte Carlo, o software MCNPX gerou tabelas de resposta para elétrons e fótons monoenergéticos para o detector  $4\pi$  e também de fótons monoenergéticos para o detector de HPGe que foram utilizadas como dados de entrada no programa ESQUEMA. A modificação e aprimoramento do código fonte do programa ESQUEMA é o objetivo principal deste trabalho.

O Programa ESQUEMA, escrito em linguagem Fortran, foi desenvolvido para simular todo o processo de desintegração radioativa, desde o núcleo pai até o núcleo filho, no seu estado fundamental. São usados dois tipos de dados de entrada: o primeiro tipo corresponde a valores obtidos na literatura a respeito do esquema de desintegração do radionuclídeo estudado e o segundo tipo são as simulações das curvas de resposta para elétrons, pósitrons e fótons, obtidas por meio do código MCNPX.

Na figura 2.4 é ilustrado o diagrama de blocos do programa ESQUEMA, sem considerar o

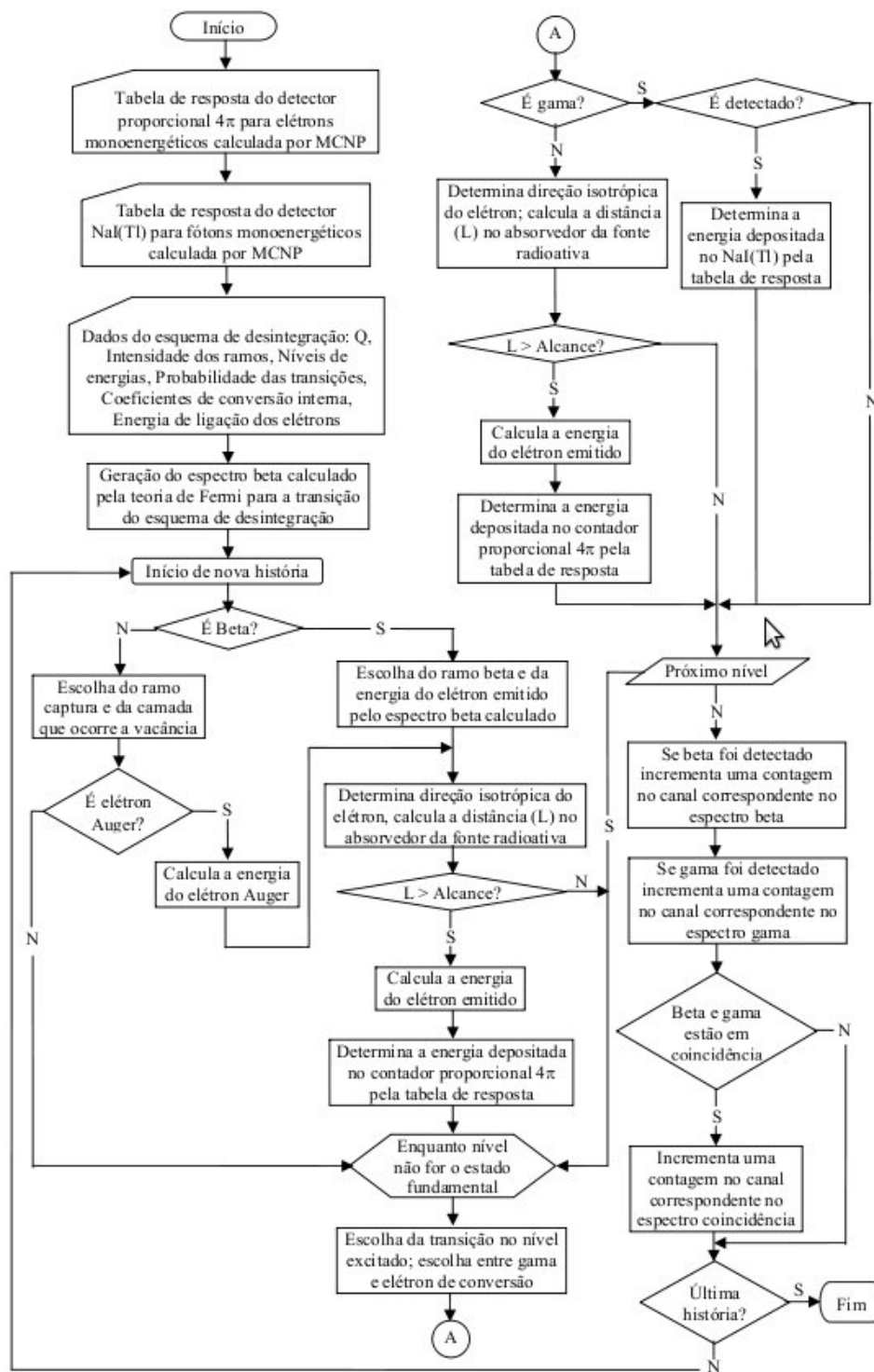
Método de Discriminação com Reposição [50].

O programa ESQUEMA faz simulações de desintegração para processos  $\beta^-$ ,  $\beta^+$  e captura eletrônica (EC). A escolha do tipo de desintegração é feita por meio do sorteio de um número aleatório e este é comparado com a probabilidade para cada um dos processos no esquema de desintegração. No caso de desintegração ser por captura eletrônica, por exemplo, a escolha de qual camada K, L, M, etc ocorrerá a vacância, é realizada através do sorteio de um novo número aleatório e este é comparado com a probabilidade da captura do elétron para cada camada.

A escolha entre a emissão de Raios-X e Elétron Auger também é feita pelo sorteio de outro número aleatório e este é comparado com a probabilidade de emissão de Raios-X da literatura. No caso de ser elétron Auger, sorteia-se outro número aleatório para determinar o seu alcance e sua energia depositada no detector  $4\pi$  é obtida por meio do cálculo das tabelas de respostas obtidas pelo código MCNPX, para elétrons monoenergéticos.

Em seguida, é determinado pelo sorteio de um número aleatório, se é emitido um raio gama ou ocorre a emissão de um elétron de conversão. Se for gama, determina-se se o mesmo foi detectado, por outro número aleatório; se for detectado, determina-se a energia depositada no detector de HPGe por meio das tabelas de resposta já calculadas pelo código MCNPX. Caso ocorra emissão de um elétron de conversão, determina-se o seu alcance por meio de outro número aleatório e sua energia depositada é obtida pelas tabelas calculadas pelo MCNPX.

Para o caso de desintegração por emissão beta é feito o sorteio de um número aleatório que determina qual dos ramos é escolhido e, por meio de outro número aleatório, a sua energia é obtida pela distribuição de Fermi. Por meio de novos números aleatórios, uma direção isotrópica é escolhida, determinada a distância de interação no absorvedor por meio de seu alcance e a energia de saída do absorvedor. A energia depositada no detector é determinada por meio das tabelas de resposta calculadas pelo MCNPX. Na versão atual do programa, as tabelas de resposta já incluem uma série de espessuras de absorvedor, previamente calculadas, e a determinação da energia de saída do absorvedor pode ser determinada sem o auxílio das tabelas de alcance para elétrons.



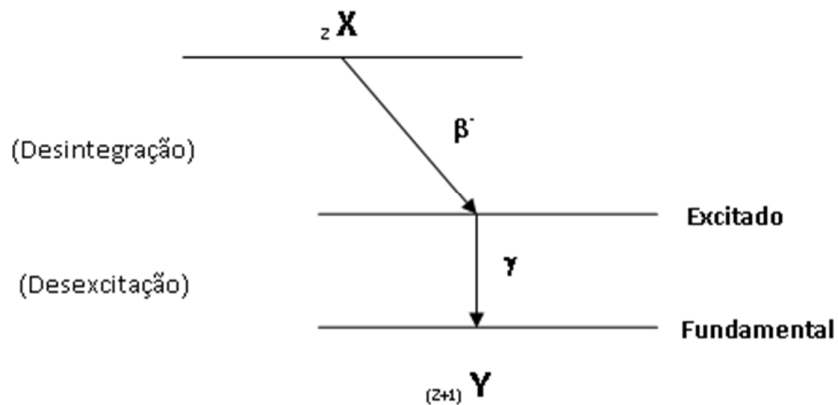
**Figura 2.4:** Diagrama de blocos do programa ESQUEMA, sem o Método de Discriminação com Reposição [50].

## 2.5 Metodologia de Cálculo

### 2.5.1 Método de Coincidências $4\pi(\beta, EC)-\gamma$

O método de coincidências  $4\pi(\beta, EC)-\gamma$  constitui uma forma primária de determinação da atividade específica e é amplamente utilizado, em razão do seu alto grau de exatidão [1-10] sendo adequado para a produção de fontes radioativas padronizadas em atividade. No Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN-CNEN/SP este método é utilizado desde 1967 e, ao longo deste tempo, foi passando por diversos aprimoramentos, o que tem possibilitado uma melhoria na exatidão, principalmente para radionuclídeos com esquemas de desintegração complexos [28-31, 34, 36]. Neste trabalho, utilizou-se o método de coincidência por software onde os pulsos da via beta e gama puderam ser analisados a *posteriori*, identificando-se as coincidências para qualquer quaisquer intervalos de níveis de discriminação gama.

Em um esquema simplificado, considerando-se o caso ideal onde não há outras radiações, conforme é apresentado na Figura 2.5, tem-se [51]:



**Figura 2.5:** Esquema simplificado de desintegração de um radionuclídeo.

$$N_{\beta} = \epsilon_{\beta} N_0 \quad (1)$$

$$N_{\gamma} = \epsilon_{\gamma} N_0 \quad (2)$$

$$N_c = \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma N_0 \quad (3)$$

onde:

$N_\beta$  = Número de contagens Beta;

$\varepsilon_\beta$  = Eficiência Beta;

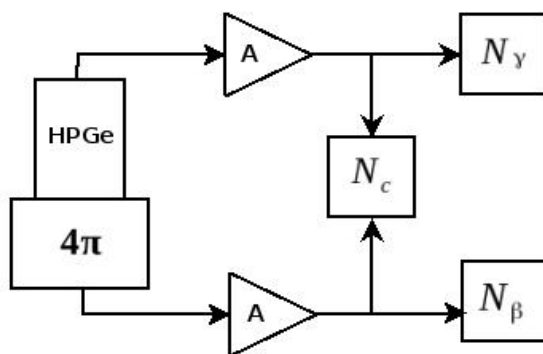
$N_\gamma$  = Número de contagens Gama;

$\varepsilon_\gamma$  = Eficiência Gama;

$N_c$  = Número de contagens de Coincidência;

$N_0$  = Taxa de desintegração.

Um esquema genérico para o arranjo experimental que possa estabelecer as relações acima é apresentado na Figura 2.6.



**Figura 2.6:** Esquema simplificado de um arranjo experimental para coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ . **HPGe** representa o detector de Germânio para detecção de radiação gama; **4π** representa o detector proporcional para detecção de betas, elétrons e raio-X, **A** representa o pré amplificador e o amplificador de sinal; **N<sub>c</sub>** representa o contador quando há coincidência entre os eventos beta e gama ao mesmo tempo; **N<sub>γ</sub>** representa o contador dos eventos gama detectados por **HPGe** e **N<sub>β</sub>** representa o contador dos eventos beta detectados por **4π**.

Multiplicando-se as equações (1) e (2) e dividindo-se pela equação (3), resulta:

$$N_0 = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad (4)$$

Dividindo-se a equação (3) pela equação (2), resulta:

$$\varepsilon_\beta = \frac{N_c}{N_\gamma} \quad (5)$$

Dividindo-se a equação (3) pela equação (1), resulta:

$$\varepsilon_\gamma = \frac{N_c}{N_\beta} \quad (6)$$

Considerando os elétrons de conversão, elétrons Auger, Raio-X e eficiência gama no detector beta, tem-se:

$$K_\alpha = \frac{\alpha \left[ \varepsilon_{ce} + (1 - \varepsilon_{ce}) \varepsilon_{(X,A)} \right] + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \quad (7)$$

Portanto as equações (1), (2) e (3), tornam-se:

$$N_\beta = N_0 \left[ \varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) K_\alpha \right] \quad (8)$$

$$N_\gamma = N_0 \varepsilon_\gamma \frac{1}{1 + \alpha} \quad (9)$$

$$N_c = N_0 \left[ \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma \frac{1}{1 + \alpha} + \frac{(1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_c}{1 + \alpha} \right] \quad (10)$$

onde:

$N_\beta$ ,  $N_\gamma$  e  $N_c$  são as taxas de contagem beta, gama e coincidência, respectivamente;

$N_0$  é a taxa de desintegração (atividade);

$\varepsilon_\beta$  é a eficiência beta;

$\varepsilon_\gamma$  e  $\varepsilon_{\beta\gamma}$  são as eficiências gama do detector gama e a eficiência gama do detector beta;

$\varepsilon_{ce}$  e  $\varepsilon_{(X,A)}$  são as eficiências de detecção para elétrons de conversão e elétrons Auger ou raio-X, respectivamente;

$\varepsilon_c$  and  $\alpha$  são, respectivamente, a eficiência para coincidências gama-gama e o coeficiente de conversão total.

Para o caso mais geral, considerando várias transições beta e gama, são introduzidas somatórias, para levar em conta a contribuição de cada uma das transições. Uma descrição completa destas equações de coincidência pode ser encontrada na literatura [1, 4-6]. As fórmulas gerais aplicadas a medidas de coincidência podem ser dadas por:

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{i=1}^m a_i \left\{ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ce_{ij}} + (1 - \varepsilon_{ce_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta\gamma_{ij}}}{1 + \alpha_{ij}} \right\} \quad (11)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{i=1}^m a_i \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \quad (12)$$

$$N_C = N_0 \sum_i^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{c_{ij}} \frac{1}{1 + \alpha_{ij}} \right] \quad (13)$$

onde:

$a_i$  e  $b_{ij}$  são as intensidades por decaimento da i-ésima transição beta e intensidade relativa da j-ésima transição com relação à i-ésima transição beta, respectivamente;

$n$  é o número de transições gama após cada transição beta;

$m$  é o número de transições beta;

$\varepsilon_{\beta_i}$  é a eficiência beta associada à i-ésima transição beta;

$\varepsilon_{\gamma_{ij}}$  e  $\varepsilon_{\beta\gamma_{ij}}$  são as eficiências gama do detector gama e a eficiência gama do detector beta, respectivamente, associadas à ij-ésima transição;

$\varepsilon_{ce_{ij}}$  e  $\varepsilon_{(X,A)_{ij}}$  são as eficiências de detecção para elétrons de conversão e elétrons Auger ou raio-X, respectivamente, associadas à ij-ésima transição e

$\varepsilon_{c_{ij}}$  and  $\alpha_{ij}$  são, respectivamente, a eficiência para coincidências gama-gama e o coeficiente de conversão total para a ij-ésima transição.

Por (8) e (9) uma estimativa da eficiência beta pode ser dada por:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\sum_i^m a_i \left[ \varepsilon_{\beta_i} \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1+\alpha_{ij}} + (1-\varepsilon_{\beta_i}) \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{c_{ij}} \frac{1}{1+\alpha_{ij}} \right]}{\sum_{i=1}^m a_i \sum_{j=1}^n b_{ij} \varepsilon_{\gamma_{ij}} \frac{1}{1+\alpha_{ij}}} \quad (14)$$

A curva de extrapolação é obtida criando-se o gráfico  $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$  vs  $\left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma}\right) / \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)$  onde o primeiro e o segundo parâmetro são a ordenada e a abcissa respectivamente e a taxa desintegração  $N_0$  é obtida no limite onde o parâmetro de eficiência tende a um:  $\frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1$  implicando

$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_0$ , ou seja, é a intersecção entre a curva extrapolada dos pontos com o eixo das

ordenadas. O termo  $\left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma}\right) / \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)$  é normalmente chamado de parâmetro de ineficiência. O

objetivo do código de Monte Carlo ESQUEMA é fornecer um gráfico de  $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$  vs.

$\left(1 - \frac{N_c}{N_\gamma}\right) / \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)$  a fim de obter a curva de extrapolação por simulação.

Abaixo são descritos os métodos utilizados até o momento pelo LMN para a obtenção desta curva. O último a ser apresentado é o método proposto no presente trabalho, o Método de Discriminação com Reposição, que é inédito na literatura.

### 2.5.2 Método dos Absorvedores

Adiciona-se absorvedores à fonte radioativa para variar a eficiência beta. A vantagem deste método é a garantia de obter a atividade da fonte por extrapolação, que em geral, é uma curva suave e em vários casos aproxima-se de uma reta. A desvantagem do método é a inutilização da amostra, uma vez que foram adicionados absorvedores. Outro grande inconveniente é o enorme tempo dispendido no procedimento, que é da ordem de semanas.

Na figura 2.7 são ilustradas duas fontes radioativas em substratos de Collodion. A amostra da esquerda está com absorvedores e nota-se claramente que nesta amostra há mais de um



absorvedor. A amostra da direita está sem absorvedor.



**Figura 2.7:** Detalhe das fontes radioativas em Collodion, antes e depois da inclusão de absorvedores À direita observa-se uma fonte sem absorvedor e à esquerda observa-se uma amostra com absorvedores.

### 2.5.3 Método por Discriminação Convencional ou por Hardware

Esse método é usado no LMN desde sua fundação em 1964. Este método consiste em variar a discriminação eletrônica da via beta com o objetivo de variar a eficiência beta.

A vantagem do método é a não inutilização da amostra após o processo. Suas desvantagens são: a não linearidade da curva de extrapolação, além de ser um processo quase tão demorado quanto o método dos absorvedores, pois a discriminação é feita por hardware, e a cada discriminação é necessário uma nova configuração do hardware.

### 2.5.4 Método por Discriminação por Software (SCS)

Utilizado pelo LMN desde o ano de 2009. Neste método apenas uma única medida é necessária e a discriminação beta é efetuada “*off-line*”, após o término da medida.

Esse método possui a mesma vantagem do método de discriminação por hardware, ou seja, o método não inutiliza a amostra e é obtido com apenas uma medida. Registra todas as alturas de pulso e ainda é um processo rápido de aquisição de dados, da ordem de um dia, podendo esses dados serem analisados posteriormente. Sua desvantagem é a não linearidade da sua curva de extrapolação.

### 3. METODOLOGIA

#### 3.1 Método por Discriminação com Reposição (DR)

O método de Discriminação por Reposição, propósito do presente trabalho e que é descrito nas seções seguintes, é um método inédito e possui as seguintes vantagens:

- Não inutiliza a amostra após o processo;
- Seu processo de obtenção é rápido, quando comparado com o método dos absorvedores;
- A curva de extrapolação *é convertida em uma reta* e, portanto, o valor extrapolado torna-se mais preciso.

Colocando-se os níveis de discriminação gama no pico de absorção total de energia da transição gama  $k$ , as contagens beta  $N_\beta$  podem ser separadas em duas componentes: uma coincidente,  $N_{\beta ck}$ , e uma não-coincidente,  $N_{\beta nck}$ :

$$N_\beta = N_{\beta ck} + N_{\beta nck} \quad (15)$$

onde:

$$N_{\beta ck} = N_0 \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq r}}^m a_i \left\{ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq k}}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ce_{ij}} + (1 - \varepsilon_{ce_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta r_{ij}}}{1 + \alpha_{ij}} \right\} \quad (16)$$

e

$$N_{\beta nck} = N_0 \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq r}}^m a_i \left\{ \varepsilon_{\beta_i} + (1 - \varepsilon_{\beta_i}) b_{ik} \frac{\alpha_{ik} [\varepsilon_{ce_{ik}} + (1 - \varepsilon_{ce_{ik}}) \varepsilon_{(X,A)_{ik}}] + \varepsilon_{\beta r_{ik}}}{1 + \alpha_{ik}} \right\} \quad (17)$$

onde o índice  $r$  corresponde às transições beta em coincidência com a transição gama  $k$  selecionada.

O índice  $k$  corresponde à transição gama selecionada para a medida de coincidência e o índice  $j$  corresponde às outras transições gama.

O segundo termo da equação (16) corresponde aos elétrons de conversão que são detectados em coincidência com o gama selecionado e o segundo termo na equação (17) corresponde aos elétrons de conversão que não estão em coincidência.

As taxas de contagem gama e de coincidência são dadas, respectivamente, por:

$$N_{\gamma k} = N_0 \sum_{\substack{i=1 \\ i=r}}^m a_i b_{ik} \varepsilon_{\gamma k} \frac{I}{I + \alpha_k} \quad (18)$$

e

$$N_{Ck} = N_0 \sum_{\substack{i=1 \\ i=r}}^m a_i \left\{ \varepsilon_{\beta_i} + (I - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq k}}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ce_{ij}} + (I - \varepsilon_{ce_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}}{I + \alpha_{ij}} \right\} b_{ik} \varepsilon_{\gamma k} \frac{I}{I + \alpha_k} \quad (19)$$

O parâmetro de eficiência é dado por:

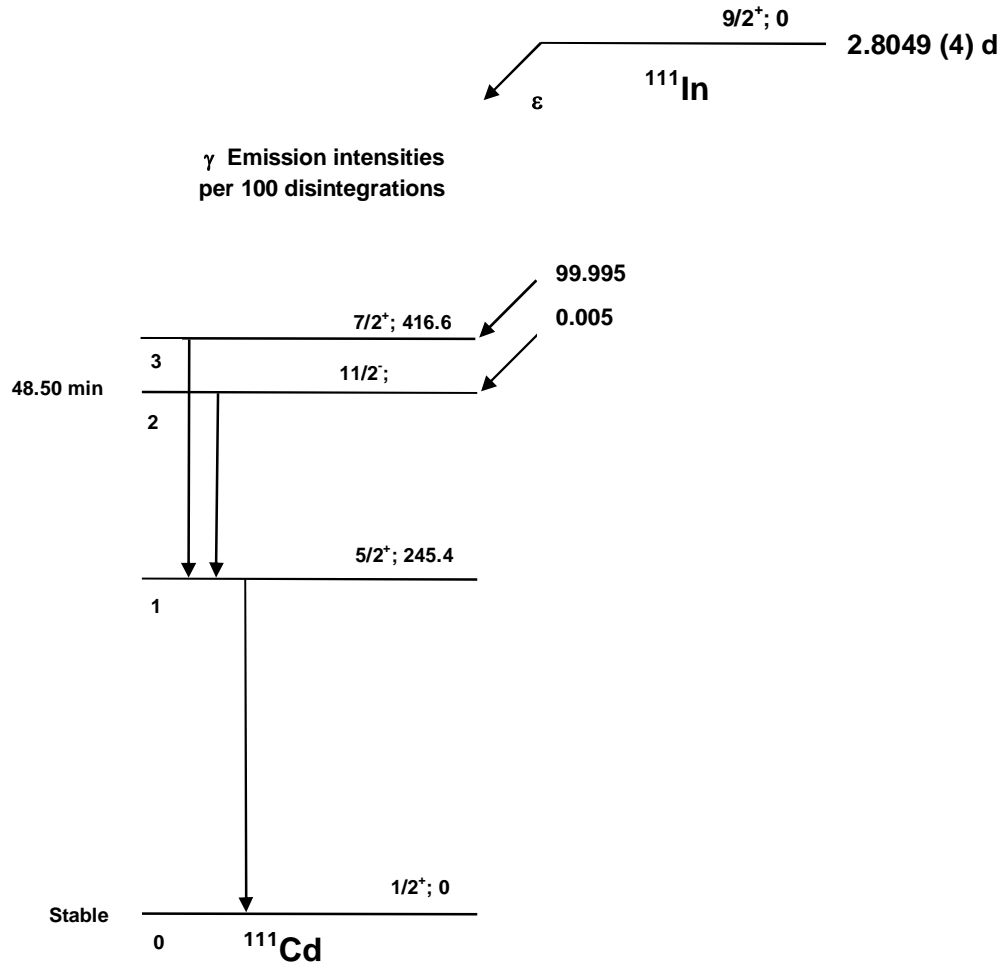
$$\frac{N_{Ck}}{N_{\gamma k}} = \sum_{\substack{i=1 \\ i=r}}^m a_i \left\{ \varepsilon_{\beta_i} + (I - \varepsilon_{\beta_i}) \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq k}}^n b_{ij} \frac{\alpha_{ij} [\varepsilon_{ce_{ij}} + (I - \varepsilon_{ce_{ij}}) \varepsilon_{(X,A)_{ij}}] + \varepsilon_{\beta_{\gamma_{ij}}}}{I + \alpha_{ij}} \right\} b_{ik} \quad (20)$$

Notar que os parâmetros  $\varepsilon_{cij}$ , presentes nas equações (13) e (14), desaparecem porque as coincidências gama-gama entre os contadores beta e gama são excluídas, em razão da janela gama ser selecionada no pico de absorção total de energia. Para transições por captura de elétrons, como no caso do  $^{111}\text{In}$ , o subscrito  $\beta$  é substituído por  $EC$  (“*Electron Capture*”).

### 3.2 Aplicação para o $^{111}\text{In}$

A escolha do radionuclídeo  $^{111}\text{In}$  no presente trabalho se deve a dois aspectos: à simplicidade do esquema de desintegração e por ter sido previamente padronizado pelo LMN, utilizando o método convencional de variação de eficiência, por meio de absorvedores externos à fonte radioativa [55].

O esquema de desintegração do  $^{111}\text{In}$  é mostrado na Figura 3.1. Este radionuclídeo decai 100% por captura eletrônica, seguida principalmente pelas transições gama com energias de 171.28 e 245.35 keV e coeficientes de conversão de 0.1036 e 0.0625, respectivamente. As principais energias dos elétrons de conversão correspondentes a essas transições são: 144 e 218 keV, respectivamente [51].



**Figura 3.1:** Esquema de decaimento do  $^{111}\text{In}$  [51].

Para este radionuclídeo, selecionando-se a transição gama de índice  $k$  para janela de coincidência, as equações (15) a (20), são dadas por [52]:

$$N_{4\pi} = N_{4\pi ck} + N_{4\pi nck} \quad (21)$$

onde:

$$N_{4\pi ck} = N_0 (\varepsilon_{4\pi})_k \quad (22)$$

$$N_{4\pi nck} = N_0 \left\{ \left[ I - (\varepsilon_{4\pi})_k \right] \left( \frac{\alpha_T \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha_T} \right)_k \right\} \quad (23)$$

e

$$(\varepsilon_{4\pi})_k = \left( \frac{N_c}{N_\gamma} \right)_k = \varepsilon_{EC} + (1 - \varepsilon_{EC}) \sum_k \left[ \prod_j \left( 1 - \frac{\alpha_T \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha_T} \right)_{j \neq k} \left( \frac{\alpha_T \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha_T} \right)_k \right] \quad (24)$$

Esta equação é geral e inclui a possibilidade de ter-se mais de uma transição gama em coincidência com o processo de captura eletrônica.

$$N_{\gamma k} = N_0 \varepsilon_{\gamma k} \frac{1}{1 + \alpha} \quad (25)$$

$$N_{Ck} = N_0 \varepsilon_{\gamma k} \frac{1}{1 + \alpha} (\varepsilon_{4\pi})_k \quad (26)$$

Portanto, o parâmetro de eficiência é dado por:

$$\frac{N_{Ck}}{N_{\gamma k}} = (\varepsilon_{4\pi})_k \quad (27)$$

Combinando-se as equações (21) a (26) tem-se:

$$\left( \frac{N_{4\pi} N_{\gamma k}}{N_{Ck}} \right) = N_0 \left\{ 1 + \left( \frac{1 - \varepsilon_{4\pi}}{\varepsilon_{4\pi}} \right)_k \left( \frac{\alpha \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha} \right)_k \right\} \quad (28)$$

Desconsiderando-se o ramo da captura eletrônica para o segundo nível excitado de 396.15 keV (0.005% de intensidade), restam apenas duas transições gama em cascata: 3→1, com 171.2 keV ( $k=1$  e  $j=2$ ) e 1→0, com 245.4 keV ( $k=2$  e  $j=1$ ). Neste caso, tem-se apenas:

$$(\varepsilon_{4\pi})_k = \left( \frac{N_c}{N_\gamma} \right)_k = \varepsilon_{EC} + (1 - \varepsilon_{EC}) \left( \frac{\alpha_T \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha_T} \right)_j \quad (29)$$

Aplicando-se o método convencional, conforme o nível de discriminação sobe, a contagem total diminui no canal EC e as contagens não coincidentes, correspondentes aos elétrons de conversão do gama selecionado, são perdidas. Como resultado, a curva de extrapolação entre

$\frac{N_{4\pi} N_\gamma}{N_C}$  vs.  $\left( 1 - \frac{N_C}{N_\gamma} \right) / \left( \frac{N_C}{N_\gamma} \right)$  torna-se não linear.

O propósito do Método de Discriminação com Reposição (DR), proposto no presente trabalho, é manter *inalteradas* estas contagens não coincidentes na via 4π(PC). Para isto, torna-se necessário repor as contagens não coincidentes, que são retiradas quando o nível de discriminação é elevado.

Das equações (21), (22) e (27), tem-se:

$$N'_{4\pi nck} = N'_{4\pi} - N'_{4\pi ck} = N'_{4\pi} - N'_{ck} \frac{N_0}{N_{\gamma k}} = N'_{4\pi} - N'_{ck} f_k \quad (30)$$

Para o <sup>111</sup>In, da equação (25), tem-se que:

$$f_k = I / \left( \varepsilon_{\gamma k} \frac{I}{I + \alpha_k} \right) \quad (31)$$

onde os apóstrofos indicam que são contagens *abaixo do nível de discriminação* estabelecido na via 4π(PC). O fator  $f_k$  (onde  $k$  é igual a 1 para  $N_{\gamma 1}$  e 2 para  $N_{\gamma 2}$ ) depende da janela gama selecionada, mas mantém-se constante à medida que a eficiência beta é variada pela discriminação de altura de pulso. Este valor normalmente é elevado, porque varia com o inverso da eficiência para o pico de absorção total gama.

No método proposto, essas contagens são modificadas, tornando-se:

$$N_{4\pi k} = N_{4\pi} + N'_{4\pi nck} \quad (32)$$

Desta forma, as contagens não coincidentes, que normalmente são removidas pelo discriminador, são *repostas, mantendo a contagem não coincidente total constante*.

A nova curva de extrapolação entre  $\left( \frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_c} \right)_k$  vs.  $\left( I - \frac{N_c}{N_{\gamma}} \right)_k / \left( \frac{N_c}{N_{\gamma}} \right)_k$  torna-se uma *linha*

*reta* porque este o termo  $\left( \frac{\alpha_T \varepsilon_{ce} + (\varepsilon_{4\pi})_{\gamma}}{I + \alpha_T} \right)_k$  torna-se constante e irá corresponder à inclinação da

reta de extrapolação obtida, conforme indicado pela equação (28).

Como o fator  $f_k$  depende de  $N_0$ , não é possível extrair seu valor diretamente do experimento. No entanto, a simulação por Monte Carlo pode fornecer esse valor, que por sua vez, pode ser usado nos dados experimentais para determinar a atividade da fonte radioativa. Neste caso, o valor extrapolado é obtido por ajuste de reta, aplicando-se a técnica de Mínimos Quadrados com matriz de covariância.

Um método alternativo é comparar a inclinação da curva de extrapolação calculada por Monte Carlo com o valor experimental, variando-se o valor de  $f_k$  na análise de dados experimentais até atingir a convergência neste valor.

Neste segundo caso, o valor da atividade final é obtido pelo método de ajuste por mínimos quadrados, considerando-se o valor de Qui-Quadrado:

$$\chi^2 = ( \bar{y}_{exp} - N_0 \bar{y}_{MC} )^T V^{-1} ( \bar{y}_{exp} - N_0 \bar{y}_{MC} ) \quad (33)$$

onde:

$\bar{y}_{exp}$  é o vetor experimental de  $N_{4\pi} N_{\gamma} / N_c$ ;

$\bar{y}_{MC}$  é o vetor  $N_{4\pi} N_{\gamma} / N_c$  calculado pelo método de Monte Carlo para atividade unitária;

$N_0$  é a atividade da fonte;

$V$  é a matriz de covariância total, incluindo incertezas experimentais e teóricas;

$T$  indica transposição de matriz.

Uma série de valores simulados é calculada para um grande intervalo do parâmetro de eficiência beta. O valor de Monte Carlo a ser usado na equação (33) é obtido por interpolação linear para a eficiência experimental correspondente.

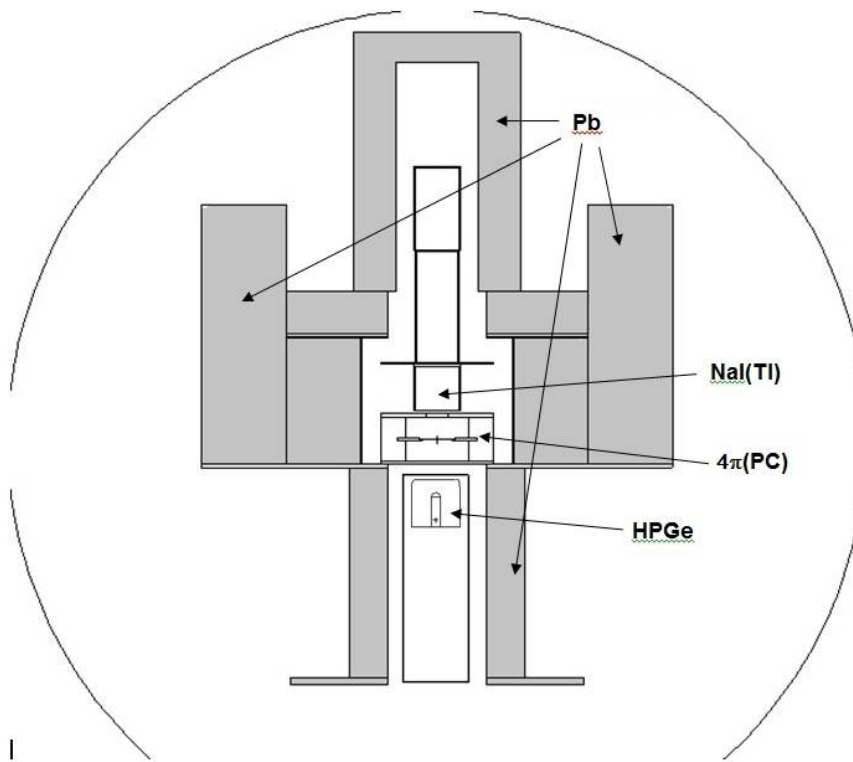
### 3.3 Simulação pelo método de Monte Carlo

As simulações foram feitas pelo programa ESQUEMA [30-31, 34, 36], considerando o sistema de coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma(\text{HPGe})$  instalado no LMN e descrito na literatura [36]. O layout do sistema foi obtido pelo programa VISED, o qual faz parte do pacote de programas do MCNP5 [46] e é mostrado na figura 3.2. É composto de um contador proporcional  $4\pi$  a gás fluente, preenchido com uma mistura de 90% de argônio + 10% metano e operado a 0,1 MPa, acoplado a um detector HPGe Modelo ORTEC GMX-20195 com 20% de eficiência relativa e 1,95 keV de resolução a 1,33 MeV, além de um cintilador de NaI(Tl) com 50,8 mm de comprimento x 50,8 mm de diâmetro. Uma imagem do Sistema de Coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$  instalado no LMN é mostrado na figura 3.3. Na figura 3.4 é mostrado o detalhe da lingueta onde é colocada a fonte radioativa no Sistema de Coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$ .

A aquisição dos dados foi feita pelo sistema de coincidência por software (SCS) equipado com uma placa da National Instruments PCI-6132 com quatro entradas analógicas e interface de aquisição NI LabVIEW [28], [53]. Neste trabalho, apenas as medidas feitas com o detector HPGe são apresentadas.

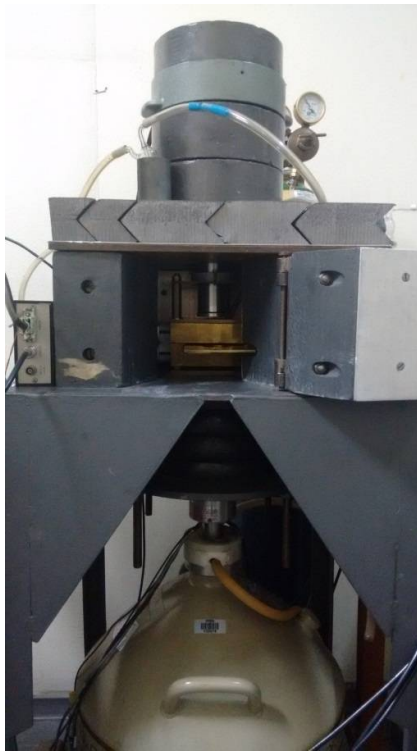
As fontes radioativas foram preparadas com alíquotas de uma solução de  $^{111}\text{InCl}_3$  em um substrato de Collodion, previamente revestido com  $10 \mu\text{g cm}^{-2}$  de ouro em ambos os lados, para tornar o filme condutor.

O número de contagens no canal EC calculado pelo código ESQUEMA foi modificado de acordo com a equação (28), modificada pela equação (32), obtendo-se os valores de  $\left(\frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_c}\right)_k$  que foram ajustados com os valores de  $\left(1 - \frac{N_c}{N_{\gamma}}\right)_k / \left(\frac{N_c}{N_{\gamma}}\right)_k$ , resultando em uma reta.



**Figura 3.2:** Diagrama do Sistema de Coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$  instalado no LMN obtido com o programa VISED.





**Figura 3.3:** Imagem do Sistema de Coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$  instalado no LMN.



**Figura 3.4:** Detalhe da lingueta onde é colocada a fonte radioativa no Sistema de Coincidência  $4\pi(\text{PC})(\beta, \text{EC})-\gamma$  instalado no LMN. O detalhe da amostra é mostrado na Figura 2.4.

### 3.4 Cálculo de Funções-Resposta

O espectro de energia depositada para os fótons no detector HPGe foram calculados pelo código MCNPX para 3024 energias de 12 keV a 3035 keV, em intervalos de 1 keV, em escala linear. As eficiências de pico calculadas foram comparadas com valores experimentais obtidos para as energias gama do  $^{152}\text{Eu}$  e os resultados concordaram, dentro das incertezas estimadas entre 1.5 – 3.0%. As funções-respostas para o detector  $4\pi(\text{PC})$ , tanto para elétrons como para fótons, já haviam sido previamente calculadas [36].

## 4. Processamento dos Dados

### 4.1 Programa ESQUEMA

No presente trabalho o programa ESQUEMA foi modificado para incorporar o método da Discriminação com Reposição, conforme indicado nas equações (30) e (32). Após a modificação, foi compilado neste trabalho em Fortran para Linux 64 bits, aplicando-se o compilador gfortran (*GNU Fortran Compiler*).

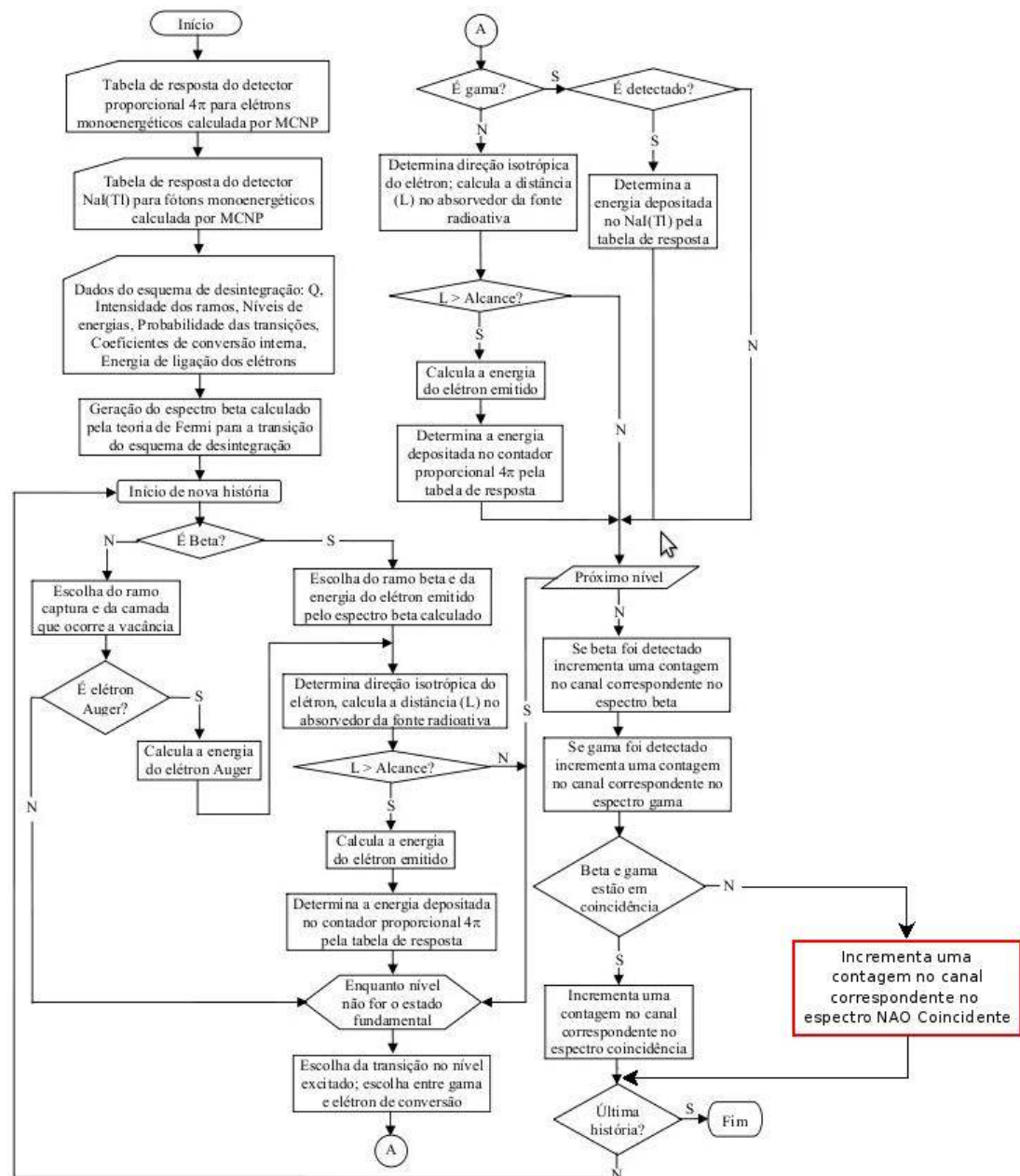
Na Figura 4.1 é apresentado o diagrama de blocos do programa ESQUEMA, modificado para Discriminação com Reposição.

### 4.2 Programa SCTAC

Este programa processa os dados experimentais de acordo com as equações do Método de Coincidências  $4\pi(\text{PC}) (\beta, \text{EC})-\gamma$ , partindo dos dados armazenados pelo Sistema de Coincidências por Software [54]. Estes dados correspondem ao instante de ocorrência e altura do pulso correspondente para todos os eventos detectados nas vias  $4\pi(\text{PC})$  e gama, acima do nível de discriminação estabelecido (normalmente para eliminar o ruído eletrônico).

O programa SCTAC foi modificado para incorporar o método de Discriminação com Reposição e utiliza como dado de entrada o fator  $f_k$ , calculado previamente pelo programa ESQUEMA, para efetuar a identificação dos eventos não-coincidentes e efetuar a reposição [54].

Os arquivos gerados, em formato ASCII, são lidos pelo programa, que seleciona os diversos parâmetros tais como: tempo morto, tempo de resolução da coincidência, janelas de discriminação nas vias  $4\pi(\text{PC})$  e gama etc. Todas as correções previstas para o método são aplicadas de acordo com a metodologia descrita na literatura [1-7].



**Figura 4.1:** Diagrama de blocos do programa ESQUEMA modificado para Discriminação com Reposição. O detalhe em vermelho ilustra a contribuição no espectro do detector 4 $\pi$ (PC), correspondente às contagens não coincidentes, abaixo do nível de discriminação.

### 4.3 Programa LINFIT

Este programa efetua ajustes lineares pelo método dos Mínimos Quadrados, aplicando-se a metodologia de Análise por Covariâncias. Desenvolvido no LMN do IPEN, o programa LINFIT foi escrito em Fortran e compilado neste trabalho em Fortran para Linux 64 bits. Para isto, usou-se o

compilador gfortran (*GNU Fortran Compiler*).

#### 4.4 Aplicação da Discriminação com Reposição (DR)

##### 4.4.1 Método 1 - Ajuste da Curva de Extrapolação com Absorvedores

No presente trabalho este método foi utilizado para a análise do  $^{111}\text{In}$ , uma vez que a inclinação da curva de extrapolação coincide com o método DR, calculado sem absorvedores. Isto ocorre porque a inclinação é causada pela detecção dos elétrons de conversão que atravessam todos os absorvedores utilizados. Os dados experimentais, obtidos com absorvedores, foram retirados de um trabalho publicado anteriormente [55].

Este método baseia-se na razão entre a atividade experimental obtida com absorvedores externos nas fontes radioativas e o valor correspondente calculado pelo código ESQUEMA, modificado para o método DR, para atividade unitária, que é definida como a razão entre o número de desintegrações simuladas e o número de histórias executadas pelo método de Monte Carlo. Para isto é feita uma interpolação nos resultados teóricos, de modo a coincidir o parâmetro de ineficiência teórico com o experimental.

As razões obtidas fornecem a atividade da fonte para cada valor de ineficiência. Por meio da equação (32) é feito um ajuste por mínimos quadrados de uma constante ( $N_0$ ), usando-se o programa LINFIT e considerando-se as diversas incertezas parciais, tanto experimentais quanto teóricas.

##### 4.4.2 Método 2 - Uso da Inclinação calculada pelo código ESQUEMA

Este método baseia-se no uso da inclinação da curva de extrapolação ( $S_{MC}$ ) calculada pelo código ESQUEMA modificado para o método DR, para atividade unitária. Para isto utiliza-se a seguinte relação:

$$N_0 = \frac{N_{0\text{ obs}}}{1 + \frac{(1 - N_c/N_\gamma)}{N_c/N_\gamma} S_{MC}} \quad (34)$$

Onde:

$N_0$  é o valor extrapolado, correspondente à atividade da fonte;

- $N_{0\ obs}$  é o valor observado de  $N_0$ , correspondente ao fator de eficiência  $Nc/N\gamma$  experimental, para discriminação mínima (apenas para corte do ruído eletrônico);
- $S_{MC}$  é a inclinação (*slope*) predita pelo programa ESQUEMA.

#### 4.4.3 Método 3 - Uso do Fator de Normalização $f_k$ calculado por ESQUEMA

Este método utiliza o valor de  $f_k$  calculado pelo programa ESQUEMA, que é aplicado como dado de entrada no programa SCTAC, modificado para o Método de Discriminação com Reposição [54]. Neste caso, a curva de extrapolação é obtida variando-se o nível de discriminação e todos os dados registrados pelo Sistema de Coincidência por Software (SCS) são usados na análise. O valor final de  $N_0$  para cada fonte é obtido fazendo-se o ajuste de reta, por Mínimos Quadrados, para a curva de extrapolação experimental.

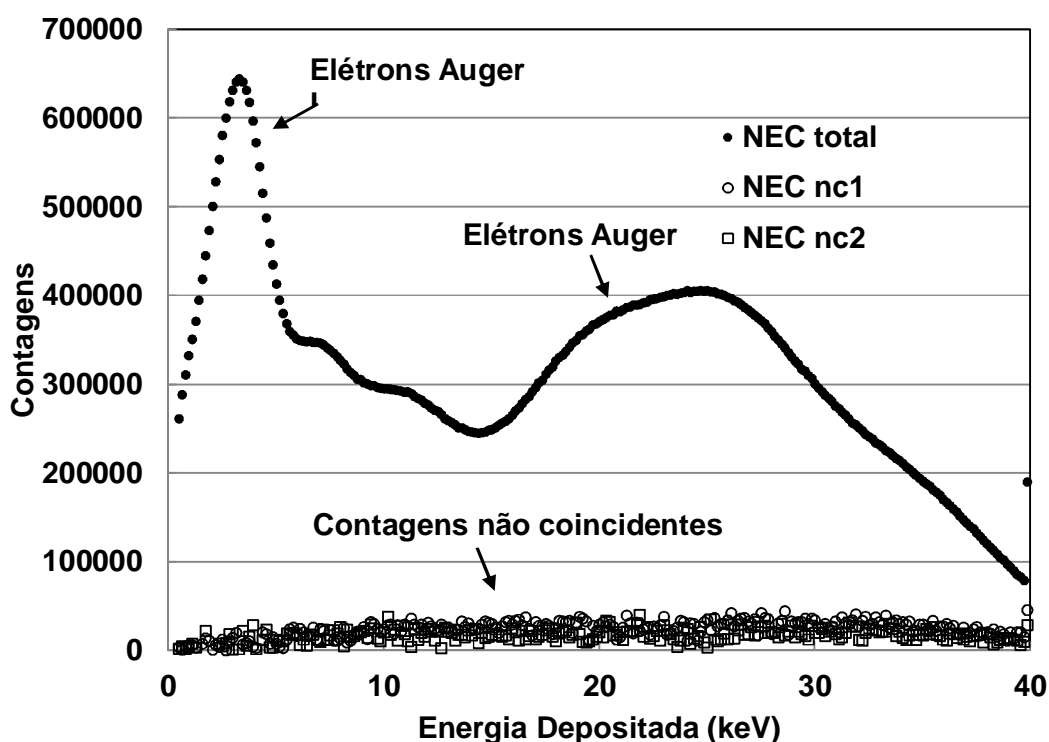
#### 4.4.4 Método 4 - Uso do Fator de Normalização $f_k$ como parâmetro livre

Este método consiste em deixar o valor de  $f_k$  como parâmetro livre e minimizar a diferença entre a inclinação experimental e a inclinação calculada pelo programa ESQUEMA. O valor final de  $N_0$  para cada fonte é obtido fazendo-se o ajuste de reta, por Mínimos Quadrados, para a curva de extrapolação experimental.

As médias ponderadas das várias fontes medidas sem absorvedores externos foram calculadas para obter a atividade final dos métodos 2, 3 e 4, levando-se em conta todas as incertezas parciais e suas correlações correspondentes.

## 5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os espectros do detector  $4\pi$ , correspondente ao esquema de decaimento do  $^{111}\text{In}$  e calculado pelo programa ESQUEMA para o nível de discriminação zero, são apresentados na Figura 5.1.



**Figura 5.1:** Espectros do detector  $4\pi$ (PC) correspondente ao esquema de decaimento do  $^{111}\text{In}$  calculados pelo programa ESQUEMA para nível de discriminação zero. *NEC* representa as contagens por Captura Eletrônica; *nc1* e *nc2* representam as contagens não coincidentes para as janelas gama de energias de 171 e 245 keV, respectivamente.

Nesta figura, obtida pela simulação do programa ESQUEMA, o espectro superior corresponde às contagens totais no detector e mostra os dois picos principais produzidos pelos elétrons Auger das camadas L e K, respectivamente. Os dois componentes não coincidentes são apresentados na parte inferior da figura e corresponde aos elétrons de conversão, correspondentes às janelas gamas posicionadas nos picos de absorção total de energia em 171 keV e 245 keV

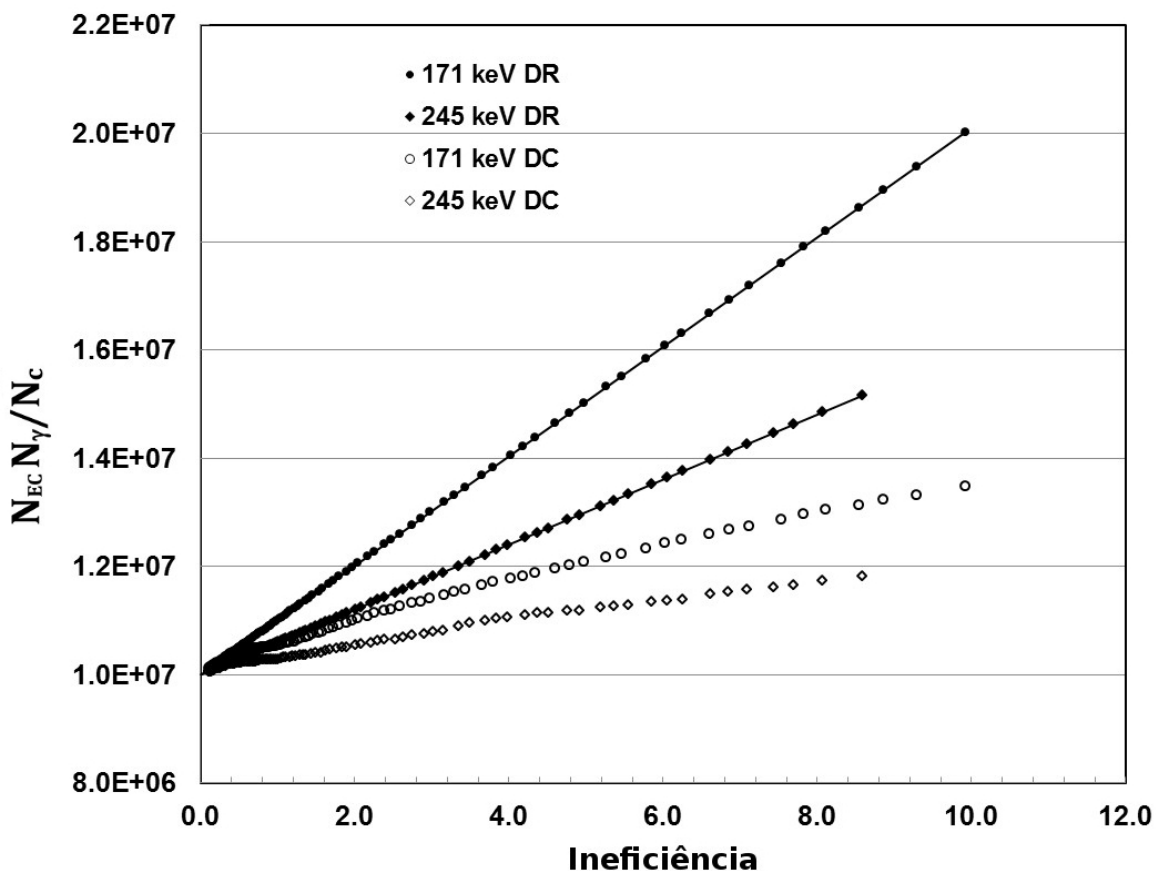
respectivamente e simulados com  $10^8$  histórias.

Para a janela gama de 171 keV, o espectro não-coincidente corresponde aos elétrons de conversão provenientes desta transição gama. O valor original foi multiplicado pelo fator  $f_k$  igual a 69,49, calculado pelo programa ESQUEMA, para ser representado na mesma escala dos eventos de captura eletrônica. Para a janela gama de 245 keV, o valor calculado de  $f_k$  foi de 82,55. Observando-se a equação (21), conclui-se que os elevados valores de  $f_k$  são resultados da baixa eficiência do detector de HPGe para a detecção de raios gama.

As curvas de extrapolação simuladas pelo programa ESQUEMA são mostradas na Figura 5.2. O círculo aberto corresponde ao método de discriminação convencional (DC) e o círculo fechado corresponde ao método proposto de discriminação com reposição (DR), para a janela gama de 171 keV. O losango aberto corresponde ao método de discriminação convencional (DC) e o losango fechado corresponde ao método proposto de discriminação com reposição (DR), para a janela gama de 245 keV. A não linearidade no método DC é bastante evidente e o comportamento linear é bastante claro para o método DR, em ambos os casos. Neste cálculo, foram geradas  $10^7$  histórias.

A inclinação observada para o método DR obtida por ajuste linear pelo programa ESQUEMA foi de 0,0951(6) para a janela gama de 171 keV. Considerando-se o valor de  $\epsilon_{\beta\gamma}$  igual a 0,0012(3), conforme cálculo pelo programa MCNPX e a equação (18), o coeficiente de conversão  $\alpha$  resultou 0,1038(7), que está em boa concordância com o valor da literatura de 0,1036(24) [51]. Para a janela gama de 245 keV, o valor correspondente de  $\epsilon_{\beta\gamma}$  foi de 0,0014(4), a inclinação observada foi de 0,0596(5) e o coeficiente de conversão  $\alpha$  foi de 0,0621(6), também em boa concordância com a literatura cujo valor é de 0,0625(7) [51].



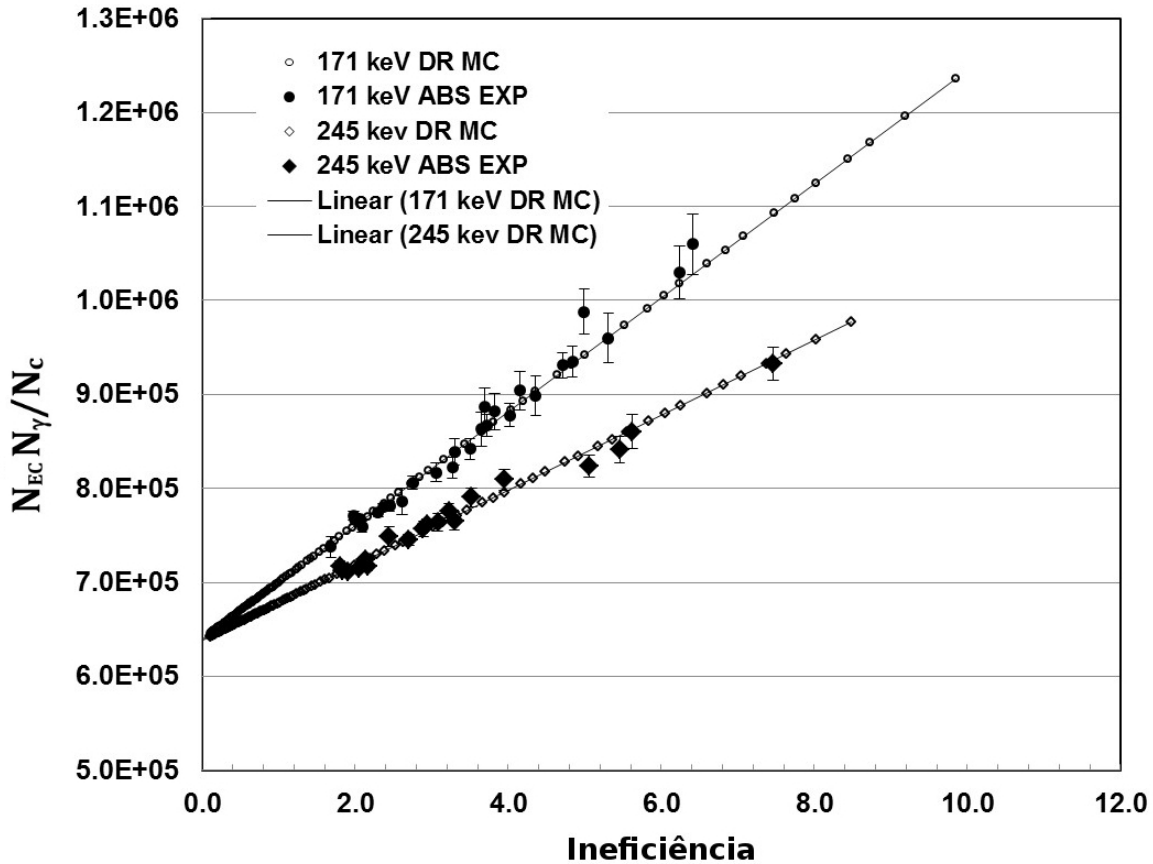


**Figura 5.2:** Curvas calculadas pelo programa ESQUEMA para obter no ponto extrapolado de ineficiência zero a atividade do  $^{111}\text{In}$ . *DC* representa método de discriminação convencional e *DR* representa método de discriminação com reposição. O comportamento de uma linha reta é claramente observado no método *DR*.

Estes resultados podem ser considerados uma verificação de auto consistência, uma vez que os valores dos coeficientes de conversão interna, fornecidos ao programa ESQUEMA, foram obtidos da literatura e estes são refletidos nas inclinações das curvas de extrapolação. Entretanto, a reposição nas contagens do detector  $4\pi$  é determinada pelo fator  $fk$ , o qual é calculado pelo número de contagens no pico de absorção total na janela gama no detector HPGe e do número de histórias no processamento do método de Monte Carlo. Portanto, a inclinação calculada é apenas indiretamente dependente dos coeficientes de conversão fornecidos ao programa ESQUEMA.

Na Figura 5.3 são apresentadas as curvas de extrapolação experimentais para o  $^{111}\text{In}$ , obtidas por aplicação de absorvedores externos feitos de películas de Collodion ou de Al, acima e abaixo da fonte radioativa. Cada fonte foi preparada colocando-se uma alíquota da solução radioativa sobre um filme de Collodion com espessura de aproximadamente  $30 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ , previamente revestido por

uma camada de ouro, com espessura de aproximadamente  $10 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Essas medidas foram obtidas previamente pelo LMN através de um sistema de coincidência por software (SCS), e são descritas na referência [55].



**Figura 5.3:** Comparação da curva experimental extrapolada e a calculada pelo programa ESQUEMA aplicando o método DR para o  $^{111}\text{In}$  (Método 1). A curva experimental foi obtida adicionando-se absorvedores acima e abaixo da fonte radioativa [55].<sup>[x1]</sup>

A razão pela qual se espera que as curvas de extrapolação obtidas pelo método dos absorvedores coincidam com as do método DR pode ser explicada considerando que os eventos não coincidentes correspondem aos elétrons de conversão, que possuem alta energia e atravessam os absorvedores externos. Deste modo, estes elétrons são detectados no detector  $4\pi(\text{PC})$ , com uma eficiência próxima de 100%.

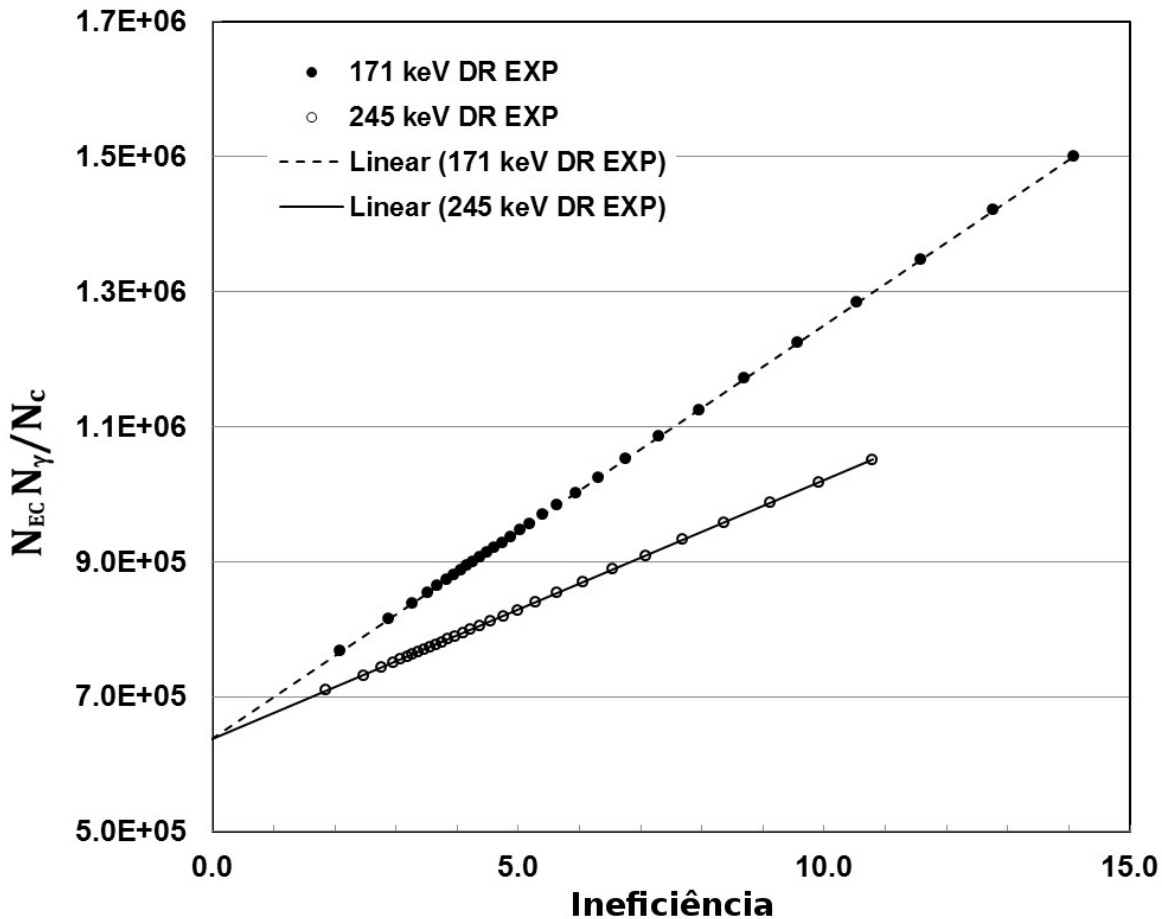
O valor extrapolado experimental obtido previamente foi de  $6,391(54) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela gama de 171 keV e  $6,380(37) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela de 245 keV [55]. O valor da atividade obtida pelo método proposto com reposição (DR) e aplicando-se o Método 1, foi de  $6,381(20) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  e  $6,401(17) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$ , respectivamente, em boa concordância com os

resultados anteriores. Há um pequeno grau de correlação entre cada par de dados devido ao valor comum de  $N\gamma$  e esse aspecto foi levado em consideração nos cálculos (ver Tabela 1).

Outros resultados experimentais foram obtidos selecionando-se sete fontes de  $^{111}\text{In}$  preparadas em filmes de Collodion, a partir da mesma solução radioativa, mas sem absorvedores externos. A inclinação teórica fornecida pelo programa ESQUEMA foi aplicada aos pontos experimentais a fim de obter os valores extrapolados (Método 2). As médias ponderadas correspondentes a todas as atividades destas fontes foram  $6,336(46) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela gama de 171 keV e  $6,341(58) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$ , para a janela gama de 245 keV, respectivamente.

Uma segunda análise desses dados foi feita usando-se os valores de  $f_k$  calculados pelo programa ESQUEMA e aplicando-os nos dados experimentais (Método 3). Neste caso, toda a curva de extrapolação foi gerada para cada fonte de  $^{111}\text{In}$ , por meio do sistema de coincidência por software (SCS), aplicando-se, neste caso, o código SCTAC, modificado para o método DR, em sua versão 14.0. As médias ponderadas de todas as fontes foram de  $6,455(24) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela gama de 171 keV e  $6,359(31) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janelas gama de 171 keV e 245 keV, respectivamente.

Uma Terceira análise dos dados foi feita deixando-se o fator  $f_k$  como um parâmetro livre e minimizando-se a diferença entre a inclinação experimental e a calculada pelo programa ESQUEMA (Método 4). As médias das atividades correspondentes foram  $6,455(24) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$ , para a janela gama de 171 keV e  $6,359(31) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$ , para a janela gama de 245 keV. As curvas extrapoladas para uma fonte típica, calculadas por este método são apresentadas na Figura 5.4.



**Figura 5.4:** Curvas extrapoladas calculadas pelo programa SCTAC para uma fonte típica de  $^{111}\text{In}$ , deixando-se o fator  $f_k$  como parâmetro livre e comparando a inclinação experimental com a calculada pelo programa ESQUEMA (Método 4). *DR* representa o método de discriminação com reposição.

As médias ponderadas totais, considerando todos os Métodos de 1 a 4, resultaram  $6,385(21) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela gama de 171 keV e  $6,397(20) \times 10^5 \text{ Bq g}^{-1}$  para a janela gama de 245 keV. Esses resultados estão em excelente acordo com aqueles obtidos pelo método convencional [55].

Nas tabelas 1 e 2 são apresentados resumos das incertezas para cada um dos métodos com os fatores de correlação considerados e as tabelas 3 a 10 apresentam detalhadamente os resultados obtidos pelo Método da Discriminação com Reposição, correspondentes a cada um dos métodos. Os dados experimentais foram obtidos pelo sistema de coincidência por *software* (SCS) e analisados pelo programa SCTAC, que faz a discriminação das alturas de pulsos e sua saída nos dá a atividade por meio da extrapolação da curva. A análise estatística dos diversos erros correlacionados e não

correlacionados foi executada pelo programa LINFIT. Em razão dos valores de tempo morto e tempo de resolução terem sido fixados por software e o sistema SCS ter uma grande exatidão na determinação do instante de ocorrência de pulso, da ordem de ns, foram desprezadas as incertezas referentes às correções destes parâmetros.

**Tabela 1** : Incertezas para a análise de dados do  $^{111}\text{In}$  aplicando-se a equação (23). Dados experimentais obtidos de [55] (Método 1). Os valores das incertezas parciais são por ponto de dado. As incertezas combinadas incluem todos os pontos (27 para a janela gama de 171 keV e 19 para a janela gama de 245 keV).

<b>Fontes de incertezas na Atividade (por ponto de dado)</b>	<b>Incertezas (u=1) (%) Método 1</b>	<b>Fator de Correlação</b>
Massa	0,15	1
Decaimento radioativo	0,01	1
Estatística nas contagens beta	0,02 – 0,03	0
Estatística nas contagens $N_c / N_\gamma$ (não correlacionado)	0,61 – 3,02	0
171 keV		
Estatística nas contagens $N_c / N_\gamma$ (correlacionado) 171 keV	0,22 – 0,41	1
Simulação de Monte Carlo (não correlacionado) 171 keV	0,15 – 0,30	0
Simulação de Monte Carlo $N_\gamma$ (correlacionado) 171 keV	0,09	1
Estatística nas contagens $N_c / N_\gamma$ (não correlacionado)	0,77 – 1,88	0
245 keV		
Estatística nas contagens $N_c / N_\gamma$ (correlacionado) 245 keV	0,09 – 0,41	1
Simulação de Monte Carlo (não correlacionado) 245 keV	0,15 – 0,34	0
Simulação de Monte Carlo $N_\gamma$ (correlacionado) 245 keV	0,09	1
Incertezas combinadas (27 dados) – 171 keV	0,42	
Qui-Quadrado Reduzido – 171 keV	1,04	
Incertezas combinadas (19 dados) – 245 keV	0,38	
Qui-Quadrado Reduzido – 245 keV	1,06	

**Tabela 2** : Incertezas para análise do  $^{111}\text{In}$  para 7 pontos de dados experimentais. (a) Usando se a inclinação teórica (Método 2); (b) Usando-se o valor de  $f_k$  calculado pelo programa ESQUEMA e aplicado no programa SCTAC, versão 14.0 (Método 3); (c) Deixando-se o valor de  $f_k$  como parâmetro livre no programa SCTAC [54] para ajustar com a inclinação dada pelo programa ESQUEMA (Método 4).

Fontes de incertezas na Atividade (por ponto de dado)	Incertezas	Incertezas	Incertezas
	(u=1) (%) Método 2	(u=1) (%) Método 3	(u=1) (%) Método 4
Massa	0,15	0,15	0,15
Decaimento radioativo	0,01	0,01	0,01
Estatística nas contagens beta	0,02 – 0,03	0,02 – 0,03	0,02 – 0,03
$(1 - N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ (não correlacionado)	0,21 – 0,48	-	-
171 keV			
NEC $N_c/N_\gamma$ (não-correlacionado) - 171 keV	1,17 – 1,21	0,68 – 0,70	1,04 - 1,16
Simulação de Monte Carlo (correlacionado) de	0,56	0,13	0,56
171 keV			
Fator $f_k$	-	0,84	-
$(1 - N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ (não-correlacionado)	0,22 – 0,52	-	-
245 keV			
NEC $N_c/N_\gamma$ (não-correlacionado) - 245 keV	1,42 – 1,45	1,18 – 1,15	1,32 – 1,42
Simulação de Monte Carlo $N_\gamma$ (correlacionado)	0,73	0,13	0,73
245 keV			
Fator $f_k$	-	0,85	-
Incertezas combinadas (todos os 7 pontos de	0,72	0,93	0,87
dados) - 171 keV			
Qui-Quadrado Reduzido	1,00	1,00	1,00
Incertezas combinadas (todos os 7 pontos de	0,91	0,94	0,94
dados) - 245 keV			
Qui-Quadrado Reduzido	0,98	0,98	0,98

## 5.1 MÉTODO 1

**Tabela 3** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **171 keV**.

<b>Inefic.</b>	<b>Atividade (kBq g<sup>-1</sup>)</b>	<b><math>\sigma_1</math> %</b>	<b><math>\sigma_2</math> %</b>	<b><math>\sigma_3</math> %</b>	<b><math>\sigma_4</math> %</b>	<b><math>\sigma_5</math> %</b>
1,98	678,1	0,61	0,22	0,15	0,09	0,15
2,00	644,6	0,58	0,21	0,15	0,09	0,15
2,06	641,5	0,40	0,15	0,15	0,09	0,15
2,09	632,5	0,75	0,26	0,15	0,09	0,15
2,30	634,4	0,52	0,17	0,16	0,09	0,15
2,37	635,9	0,38	0,13	0,16	0,09	0,15
2,45	632,8	0,64	0,20	0,16	0,09	0,15
2,61	629,0	1,69	0,49	0,17	0,09	0,15
2,75	638,3	0,82	0,23	0,17	0,09	0,15
3,06	632,2	1,19	0,31	0,18	0,09	0,15
3,27	626,4	1,25	0,30	0,18	0,09	0,15
3,30	638,0	1,62	0,39	0,18	0,09	0,15
3,50	631,1	1,30	0,30	0,19	0,09	0,15
3,72	639,8	1,25	0,27	0,19	0,09	0,15
4,02	634,6	1,32	0,27	0,20	0,09	0,15
4,84	639,7	1,71	0,30	0,22	0,09	0,15
1,68	635,6	1,41	0,57	0,17	0,09	0,15
3,65	640,0	2,05	0,45	0,23	0,09	0,15
3,69	656,0	2,23	0,49	0,23	0,09	0,15
3,82	646,4	2,14	0,45	0,24	0,09	0,15
4,15	647,6	2,22	0,44	0,24	0,09	0,15
4,36	634,9	2,29	0,44	0,25	0,09	0,15
4,71	642,4	1,45	0,26	0,26	0,09	0,15
4,99	669,5	2,39	0,41	0,27	0,09	0,15
5,31	637,3	2,73	0,44	0,27	0,09	0,15
6,24	645,9	2,71	0,38	0,30	0,09	0,15
6,41	658,0	3,02	0,41	0,30	0,09	0,15

**Resultado do ajuste para energia de 171 keV : 638,1(20) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{\text{red}} = 1,04$**

**Tabela 4** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **245 keV**.

<b>Inefic.</b>	<b>Atividade (kBq g<sup>-1</sup>)</b>	<b><math>\sigma_1</math> %</b>	<b><math>\sigma_2</math> %</b>	<b><math>\sigma_3</math> %</b>	<b><math>\sigma_4</math> %</b>	<b><math>\sigma_5</math> %</b>
1,80	647,3	0,77	0,30	0,15	0,09	0,15
1,84	641,3	0,23	0,10	0,15	0,09	0,15
1,90	638,4	0,48	0,19	0,16	0,09	0,15
2,05	637,0	0,40	0,15	0,16	0,09	0,15
2,13	642,2	0,22	0,09	0,16	0,09	0,15
2,16	635,1	0,64	0,22	0,16	0,09	0,15
2,45	653,0	1,33	0,41	0,17	0,09	0,15
2,70	641,5	0,74	0,21	0,18	0,09	0,15
2,90	645,6	1,03	0,28	0,19	0,09	0,15
2,94	647,8	0,79	0,21	0,19	0,09	0,15
3,08	645,0	1,12	0,29	0,19	0,09	0,15
3,23	650,7	0,94	0,23	0,19	0,09	0,15
3,52	653,0	1,17	0,27	0,20	0,09	0,15
5,06	632,7	1,43	0,24	0,24	0,09	0,15
3,30	639,3	1,25	0,30	0,24	0,09	0,15
3,95	654,8	1,30	0,27	0,26	0,09	0,15
5,46	634,7	1,61	0,25	0,30	0,09	0,15
5,62	644,5	2,14	0,33	0,30	0,09	0,15
7,46	645,2	1,88	0,22	0,34	0,09	0,15

**Resultado do ajuste para energia de 245 keV : 640,1 (17) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 1,06$**

As incertezas parciais associadas a este método são descritas a seguir:

$\sigma_1$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da atividade experimental obtida pelo SCTAC;

$\sigma_2$  = Erro CORRELACIONADO da atividade experimental obtida pelo SCTAC;

$\sigma_3$  = Erro estatístico NÃO CORRELACIONADO obtido da Simulação de Monte Carlo;

$\sigma_4$  = Erro sistemático da janela Gama CORRELACIONADO da Simulação de Monte Carlo;

$\sigma_5$  = Erro CORRELACIONADO da massa da amostra.



## 5.2 MÉTODO 2

**Tabela 5** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **171 keV**.

Amostra	Atividade (kBq g <sup>-1</sup> )	$\sigma_1$ %	$\sigma_2$ %	$\sigma_3$ %	$\sigma_4$ %
15015	647,3	0,39	0,56	0,28	1,12
15016	641,4	0,23	0,56	0,19	1,18
15018	629,3	0,48	0,56	0,34	1,07
15019	635,2	0,38	0,56	0,27	1,13
15020	628,2	0,31	0,56	0,24	1,16
15021	628,4	0,21	0,56	0,18	1,19
15022	627,6	0,38	0,56	0,19	1,12

**Resultado do ajuste para energia de 171 keV : 633,6(46) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 1,00$**

**Tabela 6** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **245 keV**

Amostra	Atividade (kBq g <sup>-1</sup> )	$\sigma_1$ %	$\sigma_2$ %	$\sigma_3$ %	$\sigma_4$ %
15015	652,6	0,41	0,73	0,29	1,37
15016	639,3	0,25	0,73	0,19	1,43
15018	628,3	0,52	0,73	0,36	1,32
15019	636,9	0,41	0,73	0,28	1,35
15020	627,4	0,34	0,73	0,25	1,40
15021	628,2	0,22	0,73	0,18	1,43
15022	628,7	0,40	0,73	0,29	1,37

**Resultado do ajuste para energia de 245 keV : 634,1(58) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 0,98$**

As incertezas parciais associadas a este método são descritas a seguir:

$\sigma_1$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da ineficiência obtido pela saída do SCTAC.

$\sigma_2$  = Erro CORRELACIONADO da inclinação obtido pela simulação de Monte Carlo.

O erro  $\sigma_2$  considerado acima é o resultado do ajuste de um conjunto de dados obtidos pela Simulação de Monte Carlo. Os erros considerados nesse ajuste são:

$\sigma_{2,1}$  = Erro estatístico NÃO CORRELACIONADO obtido pela Simulação de Monte Carlo.

$\sigma_{2,2}$  = Erro CORRELACIONADO na contagem Gama.

$\sigma_{2,3}$  = Erro CORRELACIONADO do coeficiente de conversão interna introduzido na Simulação de Monte Carlo – Valor obtido da referência [51].

$\sigma_3$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da Atividade calculada pelo SCTAC

$\sigma_4$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da reprodutibilidade das amostras, obtido pela diferença entre a variância total e a soma das variâncias das incertezas não correlacionadas.

### 5.3 MÉTODO 3

**Tabela 7** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **171 keV**.

Amostra	Atividade (kBq g <sup>-1</sup> )	$\sigma_1$ %	$\sigma_2$ %	$\sigma_3$ %	$\sigma_4$ %	$\sigma_5$ %	$\sigma_6$ %
15015	644,3	0,37	0,28	0,10	0,09	0,15	0,50
15016	642,2	0,27	0,19	0,10	0,09	0,15	0,61
15018	651,0	0,49	0,34	0,10	0,09	0,15	0,36
15019	650,0	0,37	0,27	0,10	0,09	0,15	0,51
15020	645,9	0,38	0,24	0,10	0,09	0,15	0,51
15021	635,8	0,27	0,18	0,10	0,09	0,15	0,61
15022	650,6	0,37	0,29	0,10	0,09	0,15	0,49

**Resultado do ajuste para energia de 171 keV : 645,5(24) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 1,00$**

**Tabela 8** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **245 keV**.

Amostra	Atividade (kBq g <sup>-1</sup> )	$\sigma_1$ %	$\sigma_2$ %	$\sigma_3$ %	$\sigma_4$ %	$\sigma_5$ %	$\sigma_6$ %
15015	649,2	0,36	0,29	0,10	0,09	0,15	1,10
15016	629,7	0,26	0,19	0,10	0,09	0,15	1,14
15018	635,7	0,48	0,36	0,10	0,09	0,15	1,02
15019	638,9	0,37	0,28	0,10	0,09	0,15	1,09
15020	634,2	0,37	0,25	0,10	0,09	0,15	1,10
15021	625,7	0,26	0,18	0,10	0,09	0,15	1,14
15022	639,1	0,35	0,29	0,10	0,09	0,15	1,10

**Resultado do ajuste para energia de 245 keV : 635,9(31) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 0,98$**

As incertezas parciais associadas a este método são descritas a seguir:

$\sigma_1$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da atividade extrapolada, calculada pelo SCTAC.

$\sigma_2$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da atividade do nível de discriminação inicial, calculada pelo SCTAC.

$\sigma_3$  = Erro CORRELACIONADO de correção abaixo do nível de discriminação.

$\sigma_4$  = Erro NÃO CORRELACIONADO das contagens Gama.

$\sigma_5$  = Erro CORRELACIONADO da massa da amostra.

$\sigma_6$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da reprodutibilidade das amostras, obtido pela diferença entre a variância total e a soma das variâncias das incertezas não correlacionadas.

#### 5.4 MÉTODO 4

**Tabela 9** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **171 keV**.

Amostra	Atividade (kBq g <sup>-1</sup> )	$\sigma_1$ %	$\sigma_2$ %	$\sigma_3$ %	$\sigma_4$ %	$\sigma_5$ %	$\sigma_6$ %
15015	646,7	0,37	0,28	0,10	0,09	0,15	0,50
15016	640,0	0,27	0,19	0,10	0,09	0,15	0,61
15018	628,6	0,49	0,34	0,10	0,09	0,15	0,36
15019	634,6	0,37	0,27	0,10	0,09	0,15	0,51
15020	627,6	0,38	0,24	0,10	0,09	0,15	0,51
15021	627,9	0,27	0,18	0,10	0,09	0,15	0,61
15022	626,9	0,37	0,29	0,10	0,09	0,15	0,49

**Resultado do ajuste para energia de 171 keV : 645,5(24) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{\text{red}} = 1,00$**

**Tabela 10** : Parâmetros ajustados usando LINFIT para energia de **245 keV**.

<b>Amostra</b>	<b>Atividade (kBq g<sup>-1</sup>)</b>	<b><math>\sigma_1</math> %</b>	<b><math>\sigma_2</math> %</b>	<b><math>\sigma_3</math> %</b>	<b><math>\sigma_4</math> %</b>	<b><math>\sigma_5</math> %</b>	<b><math>\sigma_6</math> %</b>
15015	652,0	0,36	0,29	0,10	0,09	0,15	1,10
15016	637,9	0,26	0,19	0,10	0,09	0,15	1,14
15018	627,5	0,48	0,36	0,10	0,09	0,15	1,02
15019	636,3	0,37	0,28	0,10	0,09	0,15	1,09
15020	626,8	0,37	0,25	0,10	0,09	0,15	1,10
15021	627,7	0,26	0,18	0,10	0,09	0,15	1,14
15022	628,0	0,35	0,29	0,10	0,09	0,15	1,10

**Resultado do ajuste para energia de 245 keV : 635,9(31) kBq g<sup>-1</sup> -  $\chi^2_{red} = 0,98$**

As incertezas parciais associadas a este método são descritas a seguir:

$\sigma_1$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da atividade extrapolada, calculada pelo SCTAC.

$\sigma_2$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da atividade do nível de discriminação inicial, calculada pelo SCTAC.

$\sigma_3$  = Erro CORRELACIONADO de correção abaixo do nível de discriminação.

$\sigma_4$  = Erro NÃO CORRELACIONADO das contagens Gama.

$\sigma_5$  = Erro CORRELACIONADO da massa da amostra.

$\sigma_6$  = Erro NÃO CORRELACIONADO da reprodutibilidade das amostras, obtido pela diferença entre a variância total e a soma das variâncias das incertezas não correlacionadas.

## 6. CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS FUTURAS

Uma nova funcionalidade foi introduzida no programa de Monte Carlo ESQUEMA adicionando-se ao espectro da via  $4\pi$ (PC) os eventos não coincidentes que ocorrem abaixo do nível de discriminação, que são excluídos pelo método de discriminação convencional. Desta forma, a curva de extrapolação é modificada tornando-se uma linha reta. Este processo de simulação foi aplicado ao radionuclídeo  $^{111}\text{In}$  e comparado com os resultados experimentais obtidos no Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN através do sistema de coincidência por software (SCS). Um bom resultado foi observado, indicando que esta técnica é promissora e pode ser aplicada a outros radionuclídeos.

O Método de Discriminação com Reposição foi aplicado com sucesso para o radionuclídeo  $^{111}\text{In}$  e o Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN tem planos de aplicar o Método com o programa ESQUEMA para os radionuclídeos  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  ou outros radionuclídeos de interesse.

## 7. REFERÊNCIAS

- [1] P. J. CAMPION, "The standardization of radioisotopes by beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors," *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 4, pp. 232-248, 1959.
- [2] A. GANDY, "Mesure absolue de l'activité des radionucléides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Étude des coïncidences instrumentales," *Journ. Appl. Radiat. Isot.* 11, p. 75, 1961.
- [3] A. GANDY, "Mesure absolue de l'activité des radionucléides par la méthode des coïncidences beta-gamma à l'aide de détecteurs de grand efficacité - Corrections de temps morts," *Int. Journ. Appl. Radiat. Isot.* 13, p. 501, 1962.
- [4] A. P. BAERG, "Absolute measurement of radioactivity," *Metrologia*, 3 (4), pp. 105-108, 1967.
- [5] A. P. BAERG, "Measurement of radioactivity disintegration rate by the coincidence method," *Metrologia*, 2 (1), pp. 23-32, 1966.
- [6] A. P. BAERG, "The efficiency extrapolation method in coincidence counting," *Nuclear Instruments and Methods*. 112, pp. 143-150, 1973.
- [7] H. HOUTHERMANS e M. MIGUEL, " $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence counting for the calibration of nuclides with complex decay schemes," *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 13, pp. 137-142, 1962.
- [8] Y. KAWADA, "Extended applications and improvement of the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence method in the standardization of radionuclides," *Res. of ETL. Japan*, pp. ETL-730, 1972.
- [9] J. G. V. TAYLOR, "The total internal conversion coefficient of the 279 keV transition following the decay of  $^{203}\text{Hg}$  as measured by a new coincidence method," *Canad. Journ. Phys.*, 40 (4), p. 383, 1962.
- [10] L. P. MOURA, "Método de Coincidência Generalizado para a Medida Absoluta da Atividade de Radionucléidos - Aplicação da Determinação do Coeficiente de Conversão Interna da Transição de 279 keV do  $^{203}\text{Tl}$ ," *Tese de Doutorado apresentada à Universidade de Campinas*, 1969.
- [11] M. S. DIAS, "Calibração de um sistema de câmara de ionização de poço  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  para medidas de atividade de radionucléidos," *Dissertação de Mestrado apresentado à Escola Politécnica de São Paulo/USP*, 1978.

- [12] M. F. KOSKINAS, “Desenvolvimento de um sistema de coincidência para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos empregando detectores de barreira de superfície,” *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP*, 1988.
- [13] K. A. FONSECA, “Medida Absoluta da Atividade e Determinação da Taxa de Emissão Gama por Decaimento do  $^{126}\text{I}$ ,” *Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP*, 1997.
- [14] A. M. BACCARELLI, M. S. DIAS e M. F. KOSKINAS, “Coincidence System for Standardization of Radionuclides Using a  $4\pi$  Plastic Scintillator Detector,” *Applied Radiation and Isotopes*, 58, pp. 239-244, 2003.
- [15] D. SIMÕES, “Padronização dos Radionuclídeos Multi-Emissores Gama  $^{66\text{m}}\text{Ho}$  e  $^{72}\text{Ga}$  e determinação de suas intensidades gama por decaimento,” *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP*, 2005.
- [16] J. W. MULLER e A. RYTZ, “Report on the international comparison of dilution and source preparation methods by means of  $^{60}\text{Co}$ ,” *BIPM*, 1967.
- [17] A. RYTZ, “International comparison of activity measurements of a solution of  $^{133}\text{Ba}$ ,” *Report BIPM*, p. 85/11, 1985.
- [18] A. RYTZ, “Report on the international comparison of activity Measurement of a solution of  $^{139}\text{Ce}$ ,” *Report BIPM*, p. 77/4, 1977.
- [19] G. RATEL, “Activity measurement of a  $^{75}\text{Se}$  solution in the frame of an international comparison (June 1992),” *CCEMRI(II)*, pp. 93-14, Maio 1993.
- [20] G. RATEL, “International comparison of activity measurement of a solution of  $^{109}\text{Cd}$ ,” *CCEMRI(II)*, pp. 87-7, 1987.
- [21] G. RATEL, “International comparison of activity measurements of a solution of  $^{125}\text{I}$ ,” *CCEMRI(II)*, pp. 89-2, 1989.
- [22] M. S. DIAS e M. F. KOSKINAS, “Primary standardization of  $^{75}\text{Se}$  radioactive solution,” *4<sup>th</sup> Meeting on Nuclear Applications*, Agosto 1997.
- [23] M. F. KOSKINAS, K. A. FONSECA e M. S. DIAS, “Desintegration rate measurement of a  $^{152}\text{Eu}$  solution,” *Applied Radiation and Isotopes*, 56, pp. 441-445, 2002.
- [24] M. F. KOSKINAS, E. A. SILVA, I. M. YAMAZAKI e M. S. DIAS, “Standardization of  $^{241}\text{Am}$  solution,” *Applied Radiation and Isotopes*, 64, pp. 1238-1241, 2006.
- [25] M. S. DIAS, F. F. SILVA e M. F. KOSKINAS, “Standardization and measurement of gamma-ray probability per decay of  $^{177}\text{Lu}$ ,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, pp. 1349-1353, 2010.

- [26] S. D. MOREIRA, M. F. KOSKINAS, E. A. SILVA, I. M. YAMAZAKI e M. S. DIAS, “Determination of  $^{51}\text{Cr}$  and  $^{241}\text{Am}$  X-ray and gamma-ray emission probabilities per decay,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, pp. 596-599, 2010.
- [27] M. S. DIAS, H. P. FILHO e M. F. KOSKINAS, “Optimization of a coincidence system using plastic scintillators in  $4\pi$  geometry,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 66, pp. 905-908, 2008.
- [28] F. D. TOLEDO, “Desenvolvimento de um Sistema Eletrônico com Registro Simultâneo de Amplitude e Instante de Ocorrência dos Pulsos Aplicado ao Método de Coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ ,” *Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP*, 2009.
- [29] F. BRANCACCIO, “Metodologia de Aquisição de Dados e Análise por Software, para Sistemas de Coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  e sua Aplicação na Padronização de Radionuclídeos, com Ênfase em Transições Metaestáveis,” *Tese de Doutorado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP*, 2013.
- [30] M. N. TAKEDA, M. S. DIAS e M. F. KOSKINAS, “Application of Monte Carlo Simulation to  $^{134}\text{Cs}$  Standardization by Means of  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  Coincidence System,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 52, No.5, pp. 1716-1720, 2005.
- [31] M. S. DIAS, M. N. TAKEDA e M. F. KOSKINAS, “Application of Monte Carlo simulation to the prediction of extrapolation curves in the coincidence technique,” *Applied Radiation and Isotopes*, 64, pp. 1186-1192, 2006.
- [32] M. F. KOSKINAS, K. C. GISHITOMI, A. B. BRITO, I. M. YAMAZAKI e M. S. DIAS, “Desintegration rate and gamma ray emission probability per decay measurement of  $^{123}\text{I}$ ,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 70, pp. 2091-2096, 2012.
- [33] A. B. BRITO, M. F. KOSKINAS, F. LITVAK, F. TOLEDO e M. S. DIAS, “Standardization of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  by means of a software coincidence system,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 70, pp. 2097-2102, 2012.
- [34] M. S. DIAS, M. L. O. TONGU, M. N. TAKEDA e M. F. KOSKINAS, “Monte Carlo simulation to positron emitter standardized by means of  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence system Application to  $^{22}\text{Na}$ ,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, pp. 1362-1366, 2010.
- [35] M. F. KOSKINAS, E. A. SILVA, I. M. YAMAZAKI e M. S. DIAS, “Desintegration rate measurement of  $^{182}\text{Ta}$ ,” *Applied Radiation and Isotopes*, v. 66, pp. 934-936, 2008.
- [36] M. S. DIAS, M. N. TAKEDA, F. TOLEDO, F. BRANCACCIO, M. L. O. TONGU e M. F. KOSKINAS, “Improvements in the Monte Carlo code for simulating  $4\pi\beta(\text{PC})\text{-}\gamma$  coincidence system measurements,” *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research*, 698, pp. 177-184, 2013..



- [37] G. F. KNOLL, Radiation Detection and Measurement, John Wiley & Sons Inc – Third Edition, 2000.
- [38] C. F. G. DELANEY e E. C. FINCH, Radiation Detectors, Oxford: Clarendon Press, 1992.
- [39] N. TSOULFANIDIS, Measurement and Detection of Radiation, Taylor & Francis, 1995.
- [40] R. Y. RUBINSTEIN, Simulation and the Monte Carlo Method, John Wiley & Sons, 1981.
- [41] M. H. KALOS e P. A. WHITLOCK, Monte Carlo Methods, John Wiley & Sons, 1986.
- [42] J. HAMMERSLEY e D. C. HANDSCOMB, Monte Carlo Method, London: Methuen & Co. LTD, 1964.
- [43] NATIONAL BUREAU OF STANDARDS APPLIED MATHEMATICS SERIES, “Monte Carlo Method 12, June 11,” p. 24, 1951.
- [44] I. M. SOBOL, The Monte Carlo Method, Traduzido do russo por V.I. Kisin, MIR Publisher Moscow, 1975.
- [45] <https://gcc.gnu.org>, “GCC, the GNU Compiler Collection,” [Online]. Available: [https://gcc.gnu.org/onlinedocs/gfortran/RANDOM\\_005fNUMBER.html#RANDOM\\_005fNUMBER](https://gcc.gnu.org/onlinedocs/gfortran/RANDOM_005fNUMBER.html#RANDOM_005fNUMBER). [Acesso em Julho 2015].
- [46] ORNL - OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, “Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP5,” *RSICC Computer Code Collection, Oak Ridge National Laboratory*, 2006.
- [47] J. T. GOORLEY, M. R. JAMES, T. E. BOOTH, F. B. BROWN, L. J. C. J. S. BULL, J. W. J. DURKEE, J. ELSON, M. L. FENSIN, R. FORSTER, J. S. HENDRICKS, H. G. HUGHES, R. C. JOHNS, B. C. KIEDROWSKI, R. L. MARTZ, S. G. MASHNIK e G. W. MCKINNEY, “Initial MCNP6 Release Overview – MCNP6 Version 1.0,” *Report LA-UR 13-22934*, 2013.
- [48] F. SALVAT, J. FERNANDEZ-VAREA, E. COSTA e J. SEMPAAU, “PENELOPE: Code System to Perform Monte Carlo Simulation of Electron Gamma-Ray Showers in Arbitrary Materials,” *RSICC CODE PACKAGE CCC-682, RSICC Computer Code Collection*, 2001.
- [49] F. SALVAT e J. FERNANDEZ-VAREA, “Overview of physical interaction models for photon and electron transport used in Monte Carlo codes,” *Metrologia - Online at <http://stacks.iop.org/Met/46/S112>*, pp. 46, 112-138, 2009.
- [50] M. N. TAKEDA, “Aplicação do Método de Monte Carlo no Estudo da Padronização de Radionuclídeos com Esquema de Desintegração Complexos em Sistema de Coincidências  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ ,” *Tese de Doutorado apresentada na Universidade de São Paulo*, 2006.
- [51] V. CHECHEV, “BNM – LNHB/CEA – Table de Radionucléides –  $^{111}\text{In}$ ,” 2006. [Online]. Available: [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm). [Acesso em Agosto 2014].

- [52] Y. KAWADA e Y. HINO, “Decay Data Measurements of  $^{111}\text{In}$ ,” by  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence,” *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* 241, p. 199–206, 1985.
- [53] N. INSTRUMENTS. [Online]. Available: <http://www.ni.com/labview/pt/>. [Acesso em 2014].
- [54] M. S. DIAS, “SCTAC: A Code for Activity Calculation Based on Software Coincidence Counting Measurements, Version 14.0,” *Internal Report, IPEN-CNEN/SP*, 2014.
- [55] I. T. MATOS, M. F. KOSKINAS, T. S. NASCIMENTO, I. M. YAMAZAKI e M. S. DIAS, “Standardization and determination of the total internal conversion coefficient of  $^{111}\text{In}$ ,” *Appl. Radiat. Isotopes*, 87, pp. 192-194, 2014.

## 8. APÊNDICES

### A. APÊNDICE A :

Declaração de variáveis do Programa ESQUEMA:

```
IMPLICIT REAL(4) (A-H,O-Z)

INTEGER(2) NCTG,NCTB,Z,NBIN
INTEGER(2) FLAGcol,FLAGal,FLAGRec,FLAGRB,FLAGDE,FLAGECDT
INTEGER(2) NGAMA,FLAGB,FLAGG,NCAP,NCOL,ICOL
INTEGER(2) ICX,ICCX,NPIC,CANAL1,CANAL2
INTEGER(4) TOTCC,TOTCEBD,TOTCFE,TOTCB,TOTCG,TTCSBe,TOTBETA,TOTGAMA
INTEGER(4) TOTCC2,TOTCG2
INTEGER(4) CANALFE,CNLSBe,CANALEBD,CANALB,CANALG,CANALC,TRAC,SNUC
INTEGER(4) CNLBGDT,CNLBGDP,CANALCE,CANALBCE,CANALBC
INTEGER(4) CANALMED,CANALMEE,CANMXCol,CNLmEDET,CNLmEBDT
INTEGER(4) NHIST,GT,GP,TOTec,BETAi,GAMAi,eci,TOTGMi,TOTeci,NEVGi
INTEGER(4) TOTecK,TOTecL,EBDZERO,ECBDZERO,ECecZERO,TTECBDZE
INTEGER(4) TOTCAP,RARAN,GAMABi,IPEC
REAL(4) CX,CCX,cr1,dr1,NCNG,NCNG2,INEF,INEF2
REAL(4) ATIV,EKeK,EKeL,EKec,EBitemp
REAL(4) EBietemp,kA,SIGMAALA,EGDT,GCX,RAIZEGDT,RAIZLN,COELIN
REAL(4) BC,BCTEMP,EEA,EEAL,WK,WL,PKLL,PKLX,EDESB,EDESC,KLL,KLX,KXY
REAL(4) EBmin,XCOL1,XCOL2,kB,TOTRAN
REAL(4) EQ1(1001),EQ2(1001),EQ3(1001),EQ4(1001),EQ5(1001)
REAL(4) EQ6(1001),EQ7(1001),EQ8(1001),EQ11(1001),EAL(2),PKL(2,2)
REAL(4) NNFERMI(1001,60),EBFERMI(1001,60),Xcol,Xal,ENGC(30),NKL
CHARACTER*70 CONST,ESQ,EFIB,NFERMI,EFIG,EFIGT,RANGE,OMC4PIBG
CHARACTER*70 ONBNGNC1,ONBNGNC2,ONBNGNC3,ONBNGNC4,OEXCEBCE,OEXCELBC
DIMENSION EB0(30),PB(30),EBI(298),ENG(30),EFGT(4000),BETAi(30)
DIMENSION ERANGE(60),RANGECOL(60),RANGEAL(60),EG(4000),EKLM(3)
DIMENSION CANALB(8200),CANALG(8200),CANALC(8200),CANALEBD(8200)
DIMENSION CNLBGDT(8200),CNLBGDP(8200),CANALCE(8200),CANALBCE(8200)
DIMENSION CANALFE(8200),CNLSBe(8200),EeL(30,30),GAMAi(30,30)
DIMENSION PG(30,30),ALFA(30,30),EFG(4000,4000),CANALBC(8200)
DIMENSION EeK(30,30),eci(30,30)
DIMENSION EFELM(298,298),ALFAK(30,30),ALFAL(30,30),TOTGMi(30)
DIMENSION TOTeci(30),NEVGi(30,30),CAPI(30),PCAP(30),NEVKLi(30,2)
DIMENSION PGC(30,30),EFGT(4000),EFG(4000,4000),EGB(752)
DIMENSION GAMABi(30,30)

! VARIÁVEIS REPOSIÇÃO
INTEGER*2 CANAL14,CANAL24,CCXmin
INTEGER(4) TOTCB1,TOTCB2,TOTCB3,TOTCB4
INTEGER(4) TOTCGR1,TOTCGR2,TOTCGR3,TOTCGR4
INTEGER(4) TOTCCR1,TOTCCR2,TOTCCR3,TOTCCR4
INTEGER(4) TOTR1,TOTR2,TOTR3,TOTR4
INTEGER(4) FLAGC1,FLAGC2,FLAGC3,FLAGC4
INTEGER(4) FLAGG1,FLAGG2,FLAGG3,FLAGG4
REAL(4) NCNGR1,NCNGR2,NCNGR3,NCNGR4
REAL(4) INEFR1,INEFR2,INEFR3,INEFR4
REAL(4) ATIVR1,ATIVR2,ATIVR3,ATIVR4
REAL(4) SATIVR1,SATIVR2,SATIVR3,SATIVR4
DIMENSION KANAL1(4),KANAL2(4)
DIMENSION CANALB0(8200),CANALBC01(8200),CANALBC02(8200)
```

DIMENSION CANALBC03(8200),CANALBC04(8200)  
CHARACTER\*70 ONBNGNCR1,ONBNGNCR2,ONBNGNCR3,ONBNGNCR4,OCANALB0,&  
OCANALBC01,OCANALBC02  
CHARACTER\*70 OMAESG,OMAESC,NPICO,OEXCELB,OEXCELC,OEXCELG,OEXCELCE  
CHARACTER\*70 EFIGB,EFIGBT,OEFIC,ONCONF,SAIDAT,SAIDA1,SAIDA2,SAIDA3,SAIDA4  
CHARACTER\*15 NUCLIDEO

! ARQUIVOS DE SAIDA

DATA CONST/'/opt/esquema/dados/CONST14.DAT'/  
DATA ESQ/'/opt/esquema/dados/ESQUEMA.DAT'/  
DATA EFIB/'/opt/esquema/dados/EFIBETA.DAT'/  
DATA NFERMI/'/opt/esquema/dados/FERMI.DAT'/  
DATA EFIG/'/opt/esquema/dados/EFIGAMA.DAT'/  
DATA EFIGT/'/opt/esquema/dados/EFIGAMAT.DAT'/  
DATA EFIGB/'/opt/esquema/dados/EFIGAMAB.DAT'/  
DATA EFIGBT/'/opt/esquema/dados/EFIGAMABT.DAT'/  
DATA RANGE/'/opt/esquema/dados/RANGE.DAT'/  
DATA NPICO/'/opt/esquema/dados/NPICOS.DAT'/  
DATA OMC4PIBG/'/opt/esquema/dados/MCBG.OUT'/  
DATA OEFIC/'/opt/esquema/dados/EFIC.OUT'/  
DATA ONBNGNCR1/'/opt/esquema/dados/NBGC1.OUT'/  
DATA ONBNGNCR2/'/opt/esquema/dados/NBGC2.OUT'/  
DATA ONBNGNCR3/'/opt/esquema/dados/NBGC3.OUT'/  
DATA ONBNGNCR4/'/opt/esquema/dados/NBGC4.OUT'/

! ARQUIVOS DE REPOSICAO

DATA ONBNGNCR1/'/opt/esquema/dados/NBGC1.OUT'/  
DATA ONBNGNCR2/'/opt/esquema/dados/NBGC2.OUT'/  
DATA ONBNGNCR3/'/opt/esquema/dados/NBGC3.OUT'/  
DATA ONBNGNCR4/'/opt/esquema/dados/NBGC4.OUT'/  
DATA OCANALB0/'/opt/esquema/dados/CANALB0.OUT'/  
DATA OCANALBC01/'/opt/esquema/dados/CANALBC01.OUT'/  
DATA OCANALBC02/'/opt/esquema/dados/CANALBC02.OUT'/  
DATA OMAESG/'/opt/esquema/dados/MAESTROG.OUT'/  
DATA OMAESC/'/opt/esquema/dados/MAESTROC.OUT'/  
DATA OEXCELC/'/opt/esquema/dados/EXCELC.OUT'/  
DATA OEXCELG/'/opt/esquema/dados/EXCELG.OUT'/  
DATA OEXCELB/'/opt/esquema/dados/EXCELB.OUT'/  
DATA OEXCELBC/'/opt/esquema/dados/EXCELBC.OUT'/  
DATA OEXCELCE/'/opt/esquema/dados/EXCELCE.OUT'/  
DATA OEXCEBCE/'/opt/esquema/dados/EXCELBCE.OUT'/  
DATA SAIDAT/'/opt/esquema/dados/SAIDAT.OUT'/  
DATA SAIDA1/'/opt/esquema/dados/SAIDA1.OUT'/  
DATA SAIDA2/'/opt/esquema/dados/SAIDA2.OUT'/  
DATA SAIDA3/'/opt/esquema/dados/SAIDA3.OUT'/  
DATA SAIDA4/'/opt/esquema/dados/SAIDA4.OUT'/  
DATA OCONF/'/opt/esquema/dados/CONFERE.OUT'/

## B. APENDICE B:

Implementação do código de reposição no programa ESQUEMA:

```
.           .           .  
.           .           .  
.           .           .  
  
! REPOSICAO  
IF (DISCD .EQ. 0) THEN  
  CANALB0(ICCX) = CANALB0(ICCX) + 1;  
  FLAGG1=0  
  FLAGG2=0  
  FLAGG3=0  
  FLAGG4=0  
  
  IF (NPIC .EQ. 1) THEN  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(1) .AND. IG CX .LE. KANAL2(1)) THEN  
      FLAGG1 = 1  
    END IF  
  
  ELSE IF (NPIC .EQ. 2) THEN  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(1) .AND. IG CX .LE. KANAL2(1)) THEN  
      FLAGG1 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(2) .AND. IG CX .LE. KANAL2(2)) THEN  
      FLAGG2 = 1  
    END IF  
  
  ELSE IF (NPIC .EQ. 3) THEN  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(1) .AND. IG CX .LE. KANAL2(1)) THEN  
      FLAGG1 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(2) .AND. IG CX .LE. KANAL2(2)) THEN  
      FLAGG2 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(3) .AND. IG CX .LE. KANAL2(3)) THEN  
      FLAGG3 = 1  
    END IF  
  
  ELSE IF (NPIC .EQ. 4) THEN  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(1) .AND. IG CX .LE. KANAL2(1)) THEN  
      FLAGG1 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(2) .AND. IG CX .LE. KANAL2(2)) THEN  
      FLAGG2 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(3) .AND. IG CX .LE. KANAL2(3)) THEN  
      FLAGG3 = 1  
    END IF  
  
    IF (IGCX .GE. KANAL1(4) .AND. IG CX .LE. KANAL2(4)) THEN  
      FLAGG4 = 1  
    END IF  
  
  END IF  
  
FLAGC1 = FLAGB*FLAGG1
```

```

FLAGC2 = FLAGB*FLAGG2
FLAGC3 = FLAGB*FLAGG3
FLAGC4 = FLAGB*FLAGG4

CANALBC01(ICCX) = CANALBC01(ICCX) + FLAGC1
CANALBC02(ICCX) = CANALBC02(ICCX) + FLAGC2
CANALBC03(ICCX) = CANALBC03(ICCX) + FLAGC3
CANALBC04(ICCX) = CANALBC04(ICCX) + FLAGC4
END IF
.
.
.

! CALCULA NB*NG/NC E (1-NC/NG)/(NC/NG)

OPEN (8,FILE=NPICO)
READ (8,*) NPIC

DO K=1, NPIC
TOTCG = 0
TOTCC = 0
TOTCG2 = 0
TOTCC2 = 0
TOTCGR1 = 0
TOTCGR2 = 0
TOTCGR3 = 0
TOTCGR4 = 0
TOTCCR1 = 0
TOTCCR2 = 0
TOTCCR3 = 0
TOTCCR4 = 0

READ (8,*) CANAL1, CANAL2

DO I=CANAL1, CANAL2
TOTCG = TOTCG + CANALG(I)
END DO

DO I=CANAL1, CANAL2
TOTCC = TOTCC + CANALC(I)
END DO

WRITE (9,3165) K,CANAL1,CANAL2
3165 FORMAT (/, 'PICO', I3, ', ', CANAIS ', I5, ' - ', I5, /)

IF (TOTCC .NE. 0) THEN
NCNG = FLOAT(TOTCC) / FLOAT(TOTCG)
ELSE
WRITE (9,3170)
NCNG = .00000001
END IF

3170 FORMAT ('NCNG = 0')
EFIBETA = FLOAT(TOTCB)/FLOAT(NHIST0)
ATIV = FLOAT(TOTCB) / NCNG
INEF = (1 - NCNG) / NCNG

! CALCULA TOTCGR1,2,3,4

IF ( NPIC .EQ. 1 ) THEN
DO I=KANAL1(1), KANAL2(1)
TOTCGR1 = TOTCGR1 + CANALG(I)
TOTCCR1 = TOTCCR1 + CANALC(I)
END DO

```

```

        END IF

        IF ( NPIC .EQ. 2 ) THEN
        DO I=KANAL1(1), KANAL2(1)
            TOTCGR1 = TOTCGR1 + CANALG(I)
            TOTCCR1 = TOTCCR1 + CANALC(I)
        END DO

        DO I=KANAL1(2), KANAL2(2)
            TOTCGR2 = TOTCGR2 + CANALG(I)
            TOTCCR2 = TOTCCR2 + CANALC(I)
        END DO
        END IF

        .
        .
        .

!   CALCULA TOTR1,2,3,4
DO I=1,CCXmin
    ALFAIJ = ALFA(IALFA1,JALFA1)
    FK1 = (1./(1. + ALFAIJ))*(NEVG1/TOTCGR1)
    TOTR1=TOTR1 + CANALB0(I) - CANALBC01(I)*FK1
END DO

IF (TOTCGR2 .GT. 0) THEN
    DO I=1,CCXmin
        ALFAIJ = ALFA(IALFA2,JALFA2)
        FK2 = (1./(1. + ALFAIJ))*(NEVG2/TOTCGR2)
        TOTR2=TOTR2+CANALB0(I)-CANALBC02(I)*FK2
    END DO
END IF

.
.
.

!   CALCULA ATIVIDADE 1,2,3,4
IF( NPIC .EQ. 1 ) THEN
    ATIVR1 = FLOAT(TOTCB1) / NCNGR1

ELSE IF( NPIC .EQ. 2 ) THEN
    ATIVR1 = FLOAT(TOTCB1) / NCNGR1
    ATIVR2 = FLOAT(TOTCB2) / NCNGR2
    ATIVO1 = TOTCBR / NCNGR1
    ATIVO2 = TOTCBR / NCNGR2

ELSE IF( NPIC .EQ. 3 ) THEN
    ATIVR1 = FLOAT(TOTCB1) / NCNGR1
    ATIVR2 = FLOAT(TOTCB2) / NCNGR2
    ATIVR3 = FLOAT(TOTCB3) / NCNGR3

ELSE IF( NPIC .EQ. 3 ) THEN
    ATIVR1 = FLOAT(TOTCB1) / NCNGR1
    ATIVR2 = FLOAT(TOTCB2) / NCNGR2
    ATIVR3 = FLOAT(TOTCB3) / NCNGR3
    ATIVR4 = FLOAT(TOTCB4) / NCNGR4
END IF

.
.
.

!   ESCRIVENDO NOS ARQUIVOS DE REPOSICAO
IF (K .EQ. 1) THEN
    SATIVR1 = 100*SQRT(ABS(1./TOTCCR1 + 1./TOTCGR1 -2.*&

```

```

        SQRT(ABS(TOTCCR1/(TOTCGR1**3.))) ) )
WRITE (61,3221) FK1,CCXmin,DISCDD,ATIVR1,SATIVR1,INEFR1,&
        NCNGR1,ATIVO1,TOTCGR1,TOTR1,NEVGI1
END IF

IF (K .EQ. 2) THEN
    SATIVR2 = 100*SQRT(ABS(1./TOTCCR2 + 1./TOTCGR2 -2.*&
    SQRT(ABS(TOTCCR2/(TOTCGR2**3.))) ) )
    WRITE (62,3221) FK2,CCXmin,DISCDD,ATIVR2,SATIVR2,INEFR2,&
    NCNGR2,ATIVO2,TOTCGR2,TOTR2,NEVGI2
END IF

IF (K .EQ. 3) THEN
    SATIVR3 = 100*SQRT(ABS(1./TOTCCR3 + 1./TOTCGR3 -2.*&
    SQRT(ABS(TOTCCR3/(TOTCGR3**3.))) ) )
    WRITE (63,3220) DISCDD,XCOL,ATIVR3,SATIVR3,INEFR3,NCNGR3
END IF

IF (K .EQ. 4) THEN
    SATIVR4 = 100*SQRT(ABS(1./TOTCCR4 + 1./TOTCGR4 -2.*&
    SQRT(ABS(TOTCCR4/(TOTCGR4**3.))) ) )
    WRITE (64,3220) DISCDD,XCOL,ATIVR4,SATIVR4,INEFR4,NCNGR4
END IF
.
.
.

```



### C. APENDICE C:

Saída do arquivo de Reposição NBGCR1.OUT, a primeira coluna indica o fator  $f_k$ , a oitava coluna indica as contagens não coincidentes abaixo do nível de discriminação. Notar como o valor é incrementado a cada nível de discriminação. As colunas 2 e 3 apresentam os níveis de discriminação em Canal e em MeV, respectivamente.

69.588	1	0.0000	100977400.000	0.04	0.10411578	0.90570211	100973048.0
69.588	82	0.0004	101100768.000	0.04	0.11725752	0.89504880	101095304.0
69.588	164	0.0008	101199672.000	0.04	0.12780038	0.88668174	101197728.0
69.588	246	0.0012	101315296.000	0.05	0.14012420	0.87709743	101307328.0
69.588	328	0.0016	101456048.000	0.05	0.15512231	0.86570919	101443824.0
69.588	410	0.0020	101626360.000	0.05	0.17327414	0.85231572	101614664.0
69.588	492	0.0024	101829560.000	0.05	0.19492947	0.83686948	101818336.0
69.588	574	0.0028	102064856.000	0.06	0.21999756	0.81967378	102043544.0
69.588	656	0.0032	102327296.000	0.06	0.24796602	0.80130386	102296416.0
69.588	738	0.0036	102598728.000	0.06	0.27688748	0.78315437	102525704.0
69.588	820	0.0040	102864272.000	0.07	0.30518439	0.76617527	102760216.0
69.588	902	0.0044	103105976.000	0.07	0.33093029	0.75135416	102960744.0
69.588	984	0.0048	103321512.000	0.07	0.35389376	0.73861039	103149016.0
69.588	1065	0.0052	103511848.000	0.07	0.37417421	0.72770977	103308688.0
69.588	1147	0.0056	103692328.000	0.07	0.39340544	0.71766621	103452744.0
69.588	1229	0.0060	103867656.000	0.07	0.41209140	0.70816946	103569064.0
69.588	1311	0.0064	104047624.000	0.08	0.43127275	0.69867885	103693928.0
69.588	1393	0.0068	104235176.000	0.08	0.45125890	0.68905693	103836016.0
.	.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.	.
.	.	.	.	.	.	.	.