



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

**MEDIDAS DA SEÇÃO DE CHOQUE TÉRMICA E INTEGRAL DE RESSONÂNCIA
PARA A REAÇÃO $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ E DA INTENSIDADE DE EMISSÃO GAMA
ABSOLUTA DO ^{167}Ho**

THALES SALVADOR LIMA DE MORAIS

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

Orientador:
Prof. Dr. Mauro da Silva Dias

São Paulo
2020

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

**MEDIDAS DA SEÇÃO DE CHOQUE TÉRMICA E INTEGRAL DE RESSONÂNCIA
PARA A REAÇÃO $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ E DA INTENSIDADE DE EMISSÃO GAMA
ABSOLUTA DO ^{167}Ho**

THALES SALVADOR LIMA DE MORAIS

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

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

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2020

Fonte de Financiamento: CNPq

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho,
para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

MORAIS, T. S. L. d. **Medidas da Seção de Choque Térmica e Integral de Ressonância para a reação $Ho-166m(n,g)Ho-167$ e da Intensidade de Emissão Gama Absoluta do $Ho-167$** . 2020. 117 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Morais, Thales Salvador Lima de
Medidas da Seção de Choque Térmica e Integral de
Ressonância para a reação $Ho-166m(n,g)Ho-167$ e da Intensidade
de Emissão Gama Absoluta do $Ho-167$ / Thales Salvador Lima de
Morais; orientador Mauro da Silva Dias. -- São Paulo, 2020.
117 p.

Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós-Graduação em
Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2020.

1. seção de choque térmica. 2. integral de ressonância. 3.
intensidade gama absoluta. 4. hólmió 166m. 5. hólmió 167. I.
Dias, Mauro da Silva, orient. II. Título.

*Este trabalho é dedicado a todos aqueles que ainda
sonham em fazer ciência nesse país.*

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, orientador deste trabalho, por todo o conhecimento compartilhado no desenvolvimento desta dissertação. Com sugestões, dedicação, disponibilidade, amizade e muita paciência, tornou-se a minha referência do que é ser um orientador. Seu apoio foi de fundamental importância para conclusão deste trabalho.

À Dra. Marina Fallone Koskinas, por toda a disponibilidade, sugestões e generosidade no auxílio prestado em toda a parte experimental deste trabalho.

Ao Dr. Renato Semmler, por apresentar o Centro do Reator de Pesquisas (CERPq) e indicar o orientador, pelas sugestões no seminário de área e sempre mostrar disposição em contribuir.

À Dra. Maria José Aguirre Armelin, pela generosidade em ensinar a técnica de selagem de amostras.

À Dra. Vera Akiko Maihara pela generosidade em mostrar o material que usa para as irradiações na estação pneumática e fornecer os tubos de polietileno que foram utilizados neste trabalho, assim como ensinar técnicas de preparação de envoltório de cádmio.

À Dra. Mitiko Saiki pela generosidade em ensinar uma forma de manter as amostras sem movimentação dentro do “coelho” em irradiações na estação pneumática.

À Dra. Denise Simões Moreira, pela colaboração e experiência que me possibilitaram ir além do além do meu trabalho.

À Dra. Ione Makiko Yamazaki, pela generosidade em ensinar técnica de selagem de ampolas.

Ao Dr. Franco Brancaccio, pelas sugestões e conversas durante o período deste trabalho.

Ao técnico Osvaldo Cordeiro Alípio, por todo suporte técnico prestado.

Ao Dr. Guilherme Soares Zahn, pelas sugestões no seminário de área, dicas de programa para cálculo de seção de choque teórica e sua disponibilidade em contribuir.

Ao Dr. Frederico Antonio Genezini pelas sugestões sobre cálculo de seção de choque teórica.

Ao Dr. Claudio Domienikan e ao Ms.Fabio De Toledo, pelo apoio na manutenção dos equipamentos toda a vez que foi preciso.

Aos meus pais, Carleon e Eleniete, por me proporcionar tudo o que puderam para que eu me desenvolvesse na minha carreira.

Aos meus irmãos, Thiago, Tatiana e Diana, por todo o companheirismo e apoio em todo o momento que precisei.

Aos colegas Antônio Márcio, Glauber Mauch e Lucas Stano, pelas conversas e incentivo mútuo nessa fase dos estudos.

Ao colega João Pedro, pelo companheirismo desde a graduação, incentivo para que eu continuasse os estudos na pós-graduação e apoio durante os meus estudos.

Ao amigo Dr. João Vital da Cunha Júnior, por sempre me apoiar e incentivar, ajudando a me desenvolver na ciência e em outras áreas da vida.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do superintendente Dr. Wilson Aparecido Parejo Calvo, pela oportunidade de desenvolver este trabalho na instituição.

Ao Centro do Reator de Pesquisas (CERPq), na pessoa do Dr. Frederico Antonio Genezini, pelo apoio dado ao Laboratório de Metrologia Nuclear, onde foi desenvolvido este trabalho.

Ao pessoal de operação do reator IEA-R1 e ao pessoal da Proteção Radiológica do Centro do Reator de Pesquisas (CERPq), pela colaboração durante as irradiações.

Aos amigos Daniele Cristina da Costa e Emerson Santos Silva Santos, por todo o suporte despendido para que fosse possível a confecção dos exemplares encaminhados à banca avaliadora em tempos de pandemia.

À Dra. Nora Lia Maidana e ao Dr. José Agostinho Gonçalves de Medeiros, por terem aceito participar da banca de dissertação deste trabalho e por suas importantes contribuições para a correção do mesmo.

À Organização Toca do Estudante, na pessoa do presidente José Liberio Lino dos Santos, pelo empenho em proporcionar um lugar seguro de apoio a estudantes e que tem me ajudado desde a graduação.

À minha esposa, Caroline, por todo carinho, companheirismo e apoio que tem dado para que eu pudesse me desenvolver nos estudos e na vida. Também agradeço pela ajuda na melhoria das imagens do trabalho.

*“Não alcançamos a liberdade buscando a liberdade,
mas sim a verdade.
A liberdade não é um fim,
mas uma consequência.”
(Léon Tostoi)*

RESUMO

MORAIS, Thales S. L. **Medidas da seção de choque térmica e integral de ressonância para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ e da intensidade de emissão gama absoluta do ^{167}Ho .** 2020. Dissertação de Mestrado em Tecnologia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

A seção de choque térmica (σ_0) e a integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ foram determinadas experimentalmente pelo método de ativação neutrônica e também foi determinada a intensidade de emissão γ absoluta para a energia 347 keV do ^{167}Ho . As amostras foram preparadas a partir de uma solução estoque fornecida pela Electrotechnical Laboratory (Japão) e irradiadas no núcleo do reator de pesquisa tipo piscina IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP, operando a 4,5 MW de potência. A densidade de fluxo de nêutrons foi monitorada com fios de liga Au-Al (0,1 % de Au) para a determinação do fluxo térmico e epitérmico pelo método de diferença de cádmio. A atividade do ^{167}Ho foi medida em um espectrômetro de HPGe, calibrado em eficiência de detecção. Para a medida de seção de choque térmica e integral de ressonância, o método utilizado para os cálculos foi baseado no formalismo de Westcott e o tratamento estatístico foi realizado de espectrometria γ com detector de germânio hiperpuro (20 %) previamente detalhando todas as incertezas envolvidas por meio da análise da matriz de covariância. Para a medida da intensidade de emissão γ foi utilizado um sistema absoluto por coincidências $4\pi\beta - \gamma$, acoplado a um espectrômetro de HPGe. Os resultados obtidos foram 2,2 (2) kb para σ_0 , 2,6 (2) kb para I_0 do ^{166m}Ho e 45,5 (16)% para I_γ na energia 347 keV do ^{167}Ho .

Palavras-chaves: transmutação nuclear; seção de choque térmica; integral de ressonância; hólmio 166m; hólmio 167; método de ativação neutrônica; meia-vida; intensidade gama absoluta.

ABSTRACT

MORAIS, Thales S. L. ***Measurement of thermal neutron capture cross section and resonance integral of the $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ reaction and absolute gamma intensity of ^{167}Ho .*** 2020. Dissertação de Mestrado em Tecnologia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

The thermal cross section (σ_0) and the resonance integral (I_0) of $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ reaction have been measured by the neutron activation method and also the absolute gamma-ray emission intensity for the 347 keV energy of ^{167}Ho was determined. The samples were prepared from a stock solution supplied by the Electrotechnical Laboratory (Japan) and irradiated in the IPEN-CNEN/SP IEA-R1 pool-type research reactor in which it operates at a power of 4.5 MW. The neutron flux density has been monitored with Au-Al (0,1 % of Au) wires to determine the thermal and epithermal neutron fluxes by the cadmium difference method. For the measurement of thermal cross section and integral resonance, the activity of ^{167}Ho has been measured in a gamma spectrometry system with a High Purity semiconductor detector HPGe (20 %) calibrated in detection efficiency. The calculations have been performed on basis of Westcott's formalism and all uncertainties involved were treated rigorously. To measure the intensity of gamma emission, an absolute $4\pi\beta - \gamma$ coincidence system was also used. The obtained results were 2.2 (2) kb for the σ_0 , 2.6 (2) kb for the I_0 of ^{166m}Ho and 45,5 (16)% for the I_γ for the 347 keV energy from ^{167}Ho .

Keywords: nuclear transmutation; thermal neutron cross section; resonance integral; holmium 166m; holmium 167; neutron activation method; half-life; absolute gamma intensity.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 2.1 – Diagrama da reação em cadeia do ^{165}Ho pela reação de captura de nêutron [7] e os esquemas de decaimento das principais transições γ do $^{166m,g}\text{Ho}$ e ^{167}Ho	22
Figura 2.2 – Esquema de desintegração do ^{166m}Ho em que são apresentadas as transições dos níveis energias γ de 1827 keV a 1555 keV. Os níveis de energia estão descritos em keV e os valores expostos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.	24
Figura 2.3 – Esquema de desintegração do ^{166m}Ho em que são apresentadas as transições dos níveis energias γ de 1376 keV a 80 keV. Os níveis de energia estão descritos em keV e os valores expostos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.	25
Figura 2.4 – Esquema de desintegração do ^{166g}Ho . Os níveis de energia estão apresentados em keV e os valores descritos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.	28
Figura 2.5 – Esquema de desintegração do ^{167}Ho . Os níveis de energia estão apresentados em keV e os valores descritos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.	30
Figura 2.6 – Esquema de desintegração simplificado. O nuclídeo pai (X) com número de prótons Z, decai para o estado excitado por emissão β^- e em seguida emite radiação γ chegando ao estado fundamental do núcleo filho (Y).	33
Figura 2.7 – Representação artística de uma reação nuclear genérica em três fases.	35
Figura 2.8 – Seção de choque em função da energia do nêutron para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$	36
Figura 3.1 – Imagem do núcleo do reator IEA-R1.	48
Figura 3.2 – Esquema simplificado da configuração do reator IEA-R1. Configuração 262.	49
Figura 3.3 – Imagem e dimensões do cilindro de polietileno utilizado para a irradiação da medida de intensidade gama.	50
Figura 3.4 – Imagem e dimensões do “coelho” de polietileno utilizado para a irradiação da medida de intensidade gama.	51

Figura 3.5– Amostra de Ho em filme fino de <i>collodion</i> metalizado em Au, fixado em arandela de Al, sobre um suporte de polietileno.	52
Figura 3.6– Imagens do <i>Sistema I</i> (a) montado e (b) parcialmente desmontado, formado por contador proporcional $4\pi\beta$ e os detectores de NaI(Tl) e HPGe.	53
Figura 3.7– Diagrama de blocos do <i>Sistema I</i> , formado por contador proporcional $4\pi\beta$ e os detectores semicondutores de NaI(Tl) e HPGe.	54
Figura 3.8– Imagens do detector $4\pi\beta$ com uma amostra em filme de <i>collodion</i> na gaveta a ser inserida no interior do detector.	55
Figura 3.9– Esquema do contador proporcional em corte transversal e vista frontal.	55
Figura 3.10– Gráfico representando a sobreposição dos decaimento do ^{166m}Ho , ^{166g}Ho e ^{167}Ho no decorrer das três etapas.	58
Figura 3.11– Estágios da preparação das amostras a serem irradiadas desde a deposição da amostra em papel-filtro até colocar o par de amostras nos “coelhos” de alumínio.	59
Figura 3.12– Imagens do detector de HPGe <i>CANBERRA</i> , modelo GR1520, utilizado nas medidas de seção de choque e integral de ressonância.	61
Figura 3.13– Imagem e esquema dos módulos eletrônicos associados ao detector de HPGe utilizado na medida de seção de choque e integral de ressonância.	62
Figura 3.14– Suporte utilizado nas medidas no HPGe para delimitar a distância entre a fonte e o detector.	63
Figura 3.15– Filtro de alumínio fixado no suporte das amostras.	63
Figura 4.1 – Desenho esquemático de um pulso saturado gerado e o pulso detectado.	66
Figura 4.2– Contagem por canal das desintegrações β^- detectadas pelo contador proporcional 4π para a fonte número 4.	67
Figura 4.3– Contagem por canal das desintegrações β^- da fonte número 1, detectadas pelo contador proporcional 4π que evidencia a perda das contagens β de baixas energias.	67
Figura 4.4– Contagem por canal das desintegrações β^- detectadas pelo contador proporcional 4π sem a perda dos β de baixas energias.	68
Figura 4.5– Esquema ilustrativo da atenuação de partículas β incidindo em um absorvedor (I_0) de espessura x e coeficiente de absorção μ	74

Figura 4.6– Curva de transmissão para partículas β para diferentes energias máximas de emissão β (E_m) e diferentes números atômicos do material absorvedor (Z).	75
Figura 4.7– Comparação entre as eficiências obtidas pelo método de coincidências e o obtido pelo cálculo da atividade com detector de HPGe. A incerteza para eficiência calculada pelo método de coincidências é menor que o tamanho do ponto.	78
Figura 4.8– Gráfico que mostra a variação da razão entre a atividade do ^{167}Ho ($A_{4\pi\beta\gamma}^{167}\text{Ho}$), corrigida para o final da irradiação, obtida pelo sistema absoluto e a atividade do ^{166m}Ho ($A_{HPGe}^{166m}\text{Ho}$) obtida pelo HPGe. Os dados em preto representam as medidas das amostras referentes à etapa 2.1 e os dados em vermelho são referentes à etapa 2.2.	80
Figura 4.9– Gráfico dos resíduos percentuais do ajuste da calibração de eficiência no detector de HPGe do Sistema I.	81
Figura 4.10– Gráfico das intensidades γ da energia de 347 keV do ^{167}Ho em função das amostras para as medidas referentes à etapa 2.1 (preto) e 2.2 (vermelho).	84
Figura 4.11– Gráfico dos resíduos percentuais do ajuste da calibração de eficiência no detector de HPGe.	86
Figura 4.12– Gráfico do decaimento do ^{167}Ho em função do tempo. As incertezas na taxa de desintegração são menores que o tamanho do ponto.	88
Figura 4.13– Espectro obtido na medida da fonte de Ho no detector HPGe.	90

LISTA DE TABELAS

Tabela 1.1 – Seção de choque térmica (σ_0) e integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$	20
Tabela 2.1 – Energias máximas para as transições β^- do ^{166m}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão ^[14] . Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	26
Tabela 2.2 – Energias das emissões γ do ^{166m}Ho e suas respectivas intensidades de emissão absolutas ^[14] . Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	26
Tabela 2.3 – Energias máximas para as transições β^- do ^{166g}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão ^[15] . Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	29
Tabela 2.4 – Energias das emissões γ do ^{166g}Ho e suas respectivas intensidades de emissão absolutas ^[15] . Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	29
Tabela 2.5 – Energias máximas para as transições β^- do ^{167}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão ^[17] . Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	31
Tabela 2.6 – Energias das emissões γ do ^{167}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão absoluta ^[17] . Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.	31
Tabela 3.1 – Meia-vida dos isótopos ^{167}Ho , ^{166g}Ho e ^{166m}Ho	57
Tabela 4.1 – Resultado das taxas de desintegrações β para as seis fontes nas diferentes etapas. A última coluna corresponde à incerteza estatística na taxa de contagem.	70
Tabela 4.2 – Resultado das taxas β do ^{166g}Ho e do ^{167}Ho para as seis fontes correspondentes as 12 medidas da etapa 2. As incertezas correspondem à flutuação estatística nas taxas de contagens. . .	72
Tabela 4.3 – Meia-vida dos isótopos de Eu que estariam presentes na amostra após a irradiação. O número entre parênteses representa a incerteza nos últimos dígitos.	73
Tabela 4.4 – Resultado das eficiências β média das amostras de ^{166m}Ho da etapa 3 calculadas a partir da atividade obtida nas medidas no HPGe e pelo método de coincidência. As incertezas correspondem à flutuação estatística nas taxas de contagens.	78
Tabela 4.5 – Resultado das eficiências β médias ($\bar{\epsilon}_\beta$) para as amostras de ^{167}Ho	79

Tabela 4.6–Características da fonte padrão utilizadas na calibração em eficiência de detecção do HPGe do <i>Sistema I</i> ^[43] . O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	81
Tabela 4.7–Parâmetros obtidos na curva de calibração em eficiência de detecção do detector HPGe do Sistema I ajustados para o intervalo de energias entre 121 keV e 1408 keV.	81
Tabela 4.8–Resultado das contagens totais γ para a energia de 347 keV do ¹⁶⁷ Ho para as seis amostras da etapa 1 etapa.	82
Tabela 4.9–Resultado das intensidade γ para a energia de 347 keV do ¹⁶⁷ Ho para as seis amostras correspondentes as 12 medidas da etapa 2.	83
Tabela 4.10–Características das fontes padrões utilizadas na calibração em eficiência de detecção do HPGe ^[43] . O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	85
Tabela 4.11–Parâmetros obtidos na curva de calibração em eficiência de detecção do detector HPGe ajustados para a distância de 10 cm, no intervalo de energias entre 121 keV e 1408 keV.	86
Tabela 4.12–Características do decaimento do ¹⁹⁸ Au, radionuclídeo utilizado como monitor de fluxo ^[48] . O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	87
Tabela 4.13–Resultado das atividades do ¹⁹⁸ Au (por grama de ¹⁹⁷ Au) referente às medidas com e sem Cd, a sua média e suas respectivas incertezas.	87
Tabela 4.14–Parâmetros de ativação do Au utilizados para o cálculo do fluxo térmico (ϕ_t) e epitérmico (ϕ_{epi}). O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	87
Tabela 4.15–Fluxos térmico e epitérmico obtidos. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	88
Tabela 4.16–Características do decaimento do ¹⁶⁷ Ho, radionuclídeo produto da reação ^{166m} Ho(n, γ) ¹⁶⁷ Ho. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.	90
Tabela 4.17–Resultado das atividades obtidas para o ¹⁶⁷ Ho (com e sem Cd) e suas respectivas incertezas.	91
Tabela 4.18–Resultado obtidos para seção de choque térmica e a integral de ressonância para a reação ^{166m} Ho(n, γ) ¹⁶⁷ Ho e suas respectivas incertezas.	92
Tabela 5.1 – Intensidade de emissão gama absoluta para a energia de 347 keV do ¹⁶⁷ Ho	93

Tabela 5.2 – Meia-vida do ^{167}Ho	95
Tabela 5.3 – Seção de choque térmica (σ_0) e integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$	96
Tabela 5.4 – Resultados do <i>ZETA SCORE</i> ^[55] a para seção de choque térmica σ_0 e integral de ressonância I_0 entre os dados da literatura e o presente trabalho.	96

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

HPGe	Germânio Hiper Puro
AIEA	Agência Internacional de Energia Atômica
LMN	Laboratório de Metrologia Nuclear
IPEN	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
CERPq	Centro do Reator de Pesquisas
NNDC	National Nuclear Data Center
MATSSF	Material Attenuation Shelf Shielding Factor
MCNP	Monte Carlo N-Particle
LANL	Los Alamos National Laboratory
TOI	Table of Isotopes
NDS	Nuclear Data Sheet

LISTA DE SÍMBOLOS

σ_0	Seção de choque térmica
I_0	Integral de ressonância
I_γ	Intensidade gama absoluta
ϕ_t	Fluxo de nêutrons térmicos
ϕ_{epi}	Fluxo de nêutrons epitérmicos
F_{Cd}	Fator de Cádmiio
λ	Constante de decaimento
$T_{1/2}$	Tempo de meia-vida
g ou $g(T)$	Correção para o comportamento não- $1/v$ em função da temperatura, pelo formalismo de Westcott
α	Fator de afastamento do comportamento $1/E$ do fluxo epitérmico
(n, γ)	Reação de captura radiativa
E	Energia do nêutron
T_0	Temperatura de referência equivalente a 293 K
k	Constante de Boltzmann
A	Atividade
S	Área sob a curva de absorção total
ϵ_γ	Eficiência de detecção de radiação gama
t_m	Tempo de medida
N_0	Atividade da fonte a partir de detecção beta
N_γ	Taxa de emissões gama
N_c	Número de contagens em coincidência
N_β	Taxa de emissões beta
R	Taxa de reação

N_0	Número de átomos presentes na amostra
σ	Seção de choque microscópica total
R_t	Taxa de reações produzidas por nêutrons térmicos
R_{epi}	Taxa de reações produzidas por nêutrons epitérmicos
E_1	Energia do limite inferior da integral da região epitérmica
E_2	Energia do limite superior da integral da região epitérmica
T	Temperatura
f_e	Fator de correção devido ao tempo de esperar
f_{irr}	Fator de irradiação
$\hat{\sigma}$	Seção de choque efetiva
r	Fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico
s	Fator de Westcott para o afastamento da lei-1/v da seção de choque na região epitérmica
R_{Cd}	Razão de cádmio
A_s	Atividade sem a cobertura de cádmio
A_{Cd}	Atividade com a cobertura de cádmio
k_δ	Coeficiente tabelado por Westcott que relaciona a razão de cádmio e a fração de nêutrons intermediários para uma espessura de folha de cádmio
ϕ_0	Fluxo convencional
s'	Fator de Westcott para o afastamento da lei-1/v da seção de choque na região epitérmica, referente a integração entre μkT e a energia de corte de cádmio
E_{Cd}	Energia do corte de cádmio
F	Fator de correção para a perturbação de fluxo térmico causada pela presença da folha
$\frac{R'}{R'-1}$	Razão entre a densidade de nêutrons total e subcádmio
G_t	Fator de correção de autoabsorção do fluxo térmico no alvo

G_{epi}	Fator de correção de autoabsorção do fluxo epitérmico no alvo
n	Densidade total de nêutrons
v_T	Velocidade mais provável
m	Massa do nêutron
v_0	Velocidade de referência equivalente a 2200 m/s
E_0	Energia do nêutron de referência equivalente a 0,0253 eV
$\hat{\sigma}_m$	Seção de choque efetiva Maxwelliana
$\bar{\sigma}$	Seção de choque média
\bar{v}	Velocidade média
β	Radiação beta
γ	Radiação gama
τ	Tempo morto
f_τ	Fator de correção de tempo morto
r_β	Taxa de contagens beta
f_{geo}	Fator de correção geométrico
f_{At}	Fator de correção de atenuação
f_{emp}	Fator de correção de empilhamento de picos
f_{soma}	Fator de correção de efeito soma em cascata

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	20
1.1	Considerações gerais	20
1.2	Objetivos	21
2	FUNDAMENTOS TEÓRICOS	22
2.1	Reações de múltiplas capturas a partir do ^{165}Ho	22
2.2	Características do $^{166\text{m}}\text{Ho}$	23
2.2.1	Esquema de desintegração	23
2.2.2	Transições β^-	26
2.2.3	Transições γ	26
2.3	Características do $^{166\text{g}}\text{Ho}$	27
2.3.1	Esquema de desintegração	27
2.3.2	Transições β^-	29
2.3.3	Transições γ	29
2.4	Características do ^{167}Ho	30
2.4.1	Esquema de desintegração	30
2.4.2	Transições β^-	31
2.4.3	Transições γ	31
2.5	Medida de intensidade de emissão γ absoluta	32
2.6	Método de coincidência	32
2.7	Seção de choque	34
2.7.1	Seção de choque para reação de captura radiativa (n,γ)	35
2.8	Determinação do fluxo	37
2.8.1	Fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico (r)	38
2.8.2	Cálculo do fluxo térmico ϕ_t	40
2.8.3	Cálculo do fluxo epitérmico ϕ_{epi}	41
2.9	Formalismo de Ativação	42
2.10	Formalismo de Westcott	44
3	PARTE EXPERIMENTAL	48
3.1	Reator IEA-R1	48
3.2	Medidas da intensidade de emissão gama absoluta	50
3.2.1	Preparação das amostras para a irradiação	50
3.2.2	Irradiação na Estação 4	51
3.2.3	Preparação das amostras para a medida em sistema absoluto	52

3.2.4	Sistema absoluto $4\pi\beta - \gamma$	52
3.2.4.1	Contador proporcional $4\pi\beta$	54
3.2.4.2	Cintilador NaI(Tl)	56
3.2.4.3	Detector de HPGe do <i>Sistema I</i>	57
3.2.5	Medidas em sistema absoluto e HPGe	57
3.3	Medida da seção de choque térmica e integral de ressonância	58
3.3.1	Preparação das amostras	59
3.3.2	Irradiação próxima ao núcleo do reator	60
3.3.3	Detector de HPGe	60
3.3.4	Medidas no detector de HPGe	62
4	ANÁLISE E TRATAMENTO DE DADOS	65
4.1	Medidas da intensidade de emissão gama absoluta	65
4.1.1	Correção de tempo morto	65
4.1.2	Correção da perda das contagens β de baixa energia	66
4.1.3	Determinação das taxas de desintegrações β do $^{166m,166g,167}\text{Ho}$ presentes nas amostras	70
4.1.4	Influência dos “contaminantes” nas amostras	72
4.1.5	Determinação das eficiências β	74
4.1.5.1	Atenuação β na fonte	74
4.1.5.2	Cálculo das eficiências β de cada amostra	77
4.1.6	Determinação da curva de eficiência para o HPGe do sistema 1	80
4.1.7	Área do pico de absorção total do ^{167}Ho	82
4.1.8	Cálculo da intensidade γ	82
4.2	Medida da seção de choque térmica e integral de ressonância	84
4.2.1	Calibração em eficiência do detector HPGe	84
4.2.2	Determinação do fluxo	86
4.2.3	Determinação da meia-vida do ^{167}Ho	88
4.2.4	Determinação do fator $g(T)$ de Westcott	89
4.2.5	Determinação da seção de choque e integral de ressonância .	89
5	RESULTADOS E DISCUSSÃO	93
5.1	Intensidade de emissão gama	93
5.2	Meia-vida do ^{167}Ho	95
5.3	Seção de choque térmica e integral de ressonância	95
6	CONCLUSÃO	98
7	REFERÊNCIAS	99

	APÊNDICE A – ATIVIDADE DO ^{167}Ho INDUZIDA POR CAPTURA RADIATIVA DE NÊUTRONS EM AMOSTRA CONTENDO ^{165}Ho E $^{166\text{M}}\text{Ho}$	105
--	------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	------------

APÊNDICE B – PROGRAMAS UTILIZADOS NESSE TRABALHO 115

B.1	ALPINO V.3	115
B.2	NUCSUM8	115
B.3	LOGFIT	116
B.4	LINFIT	116
B.5	SCTAC68V	116
B.6	MATSSF	117
B.7	MCNP6	117

1 INTRODUÇÃO

1.1 Considerações gerais

A captura de nêutrons é um dos tipos de interações entre nêutrons e núcleos atômicos que desperta grande interesse de estudo em virtude de sua associação à produção de elementos em reatores nucleares, produção de radionuclídeos para a física médica, transmutações nucleares ligadas ao gerenciamento de rejeitos radioativos e nucleossíntese estelar [1,2,3].

O conceito de seção de choque foi definido para quantificar a probabilidade de ocorrência de reações nucleares e depende da composição do núcleo-alvo e da energia do nêutron incidente. A determinação da seção de choque de núcleos instáveis induzida por nêutrons pode apresentar certa complexidade em razão da radioatividade do núcleo-alvo, da baixa concentração na amostra e da possível presença de radionuclídeos interferentes, que podem dificultar a identificação do radionuclídeo estudado, exigindo a prévia separação química.

Um exemplo deste caso é o que ocorre na reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$. Na tabela 1.1 estão apresentados os valores de seção de choque térmica (σ_0) e integral de ressonância (I_0) encontrados na literatura para esta reação.

Tabela 1.1 – Seção de choque térmica (σ_0) e integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$

Autor	Seção de choque térmica σ_0 [kb]	Integral de ressonância I_0 [kb]	Ano
Masyanov <i>et al.</i> [4]	$9,14 \pm 0,65$	$1,14 \pm 0,09$	1991
Harada <i>et al.</i> [5]	3 ± 1	-	2000
Krane [6]	$4,1 \pm 0,7$	-	2000
Katoh <i>et al.</i> [7]	$3,1 \pm 0,8$	$10,0 \pm 2,7$	2002

Como pode ser observado na tabela 1.1, há escassez, discordância e imprecisão para os dados nucleares da reação citada. Parte da dificuldade para se medir a seção de choque e a integral de ressonância com melhor exatidão é ocasionada pela grande incerteza que há no valor da intensidade de emissão γ absoluta do ^{167}Ho [7], sendo mais de 21% e que normalmente é utilizado nos cálculos.

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) tem obtido uma boa experiência na determinação

da seção de choque induzida por nêutrons por meio do método de ativação e medida da intensidade de emissão γ absoluta, tendo como resultado diversas publicações^[8,9,10,11,12], além de uma dissertação de mestrado^[8] e uma tese de doutorado^[11] sobre estes dois temas.

1.2 Objetivos

Os objetivos do presente trabalho são: a) determinar experimentalmente a intensidade de emissão γ absoluta do ^{167}Ho , para a energia de 347 keV e b) os valores da seção de choque para nêutrons térmicos (σ_0) e da integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$.

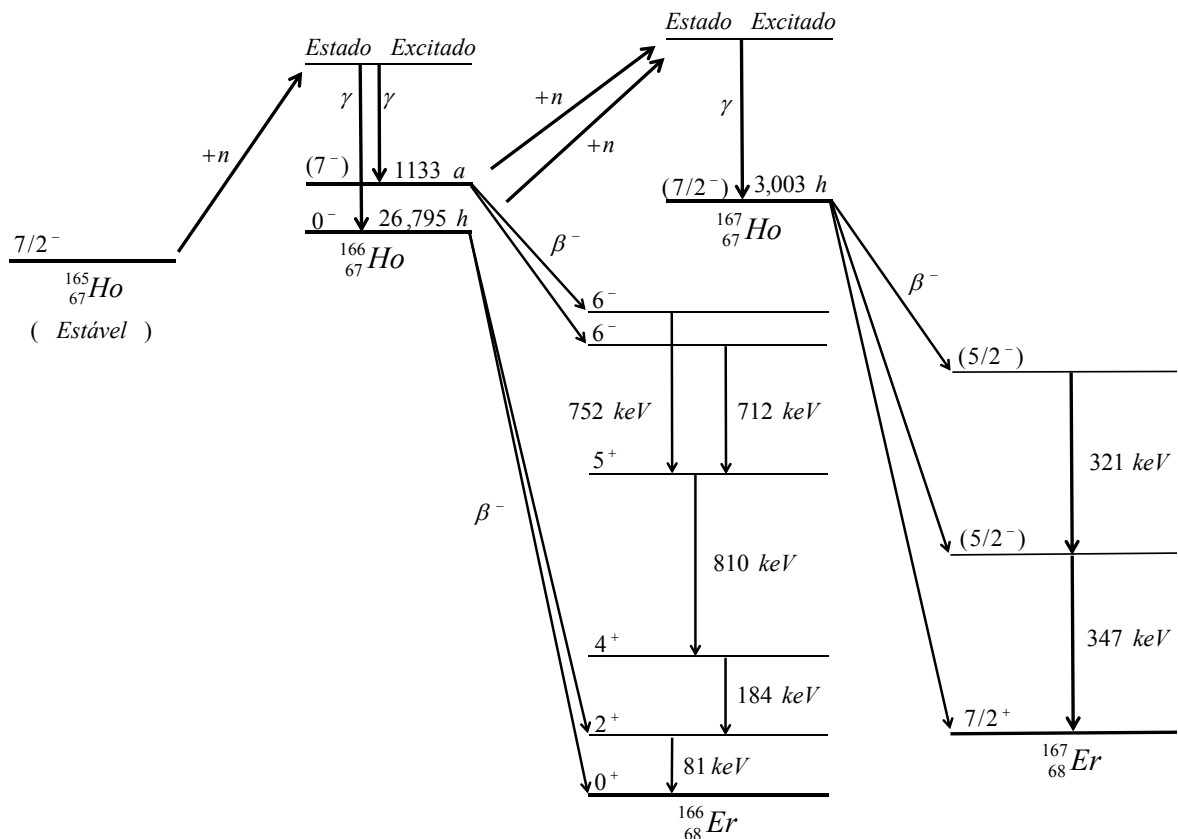
A relevância do tema justifica-se pela necessidade de novos dados em face à escassez e discordância dos resultados apresentados na literatura para a reação de captura radiativa (n, γ) do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ^[4,5,6,13] e a baixa exatidão para a intensidade de emissão γ absoluta nas energias do ^{167}Ho , uma vez que sua incerteza na literatura é da ordem de 21%^[7]. Portanto, este trabalho se tornou oportuno por contribuir com a aquisição de novos dados para seção de choque, integral de ressonância e intensidade γ absoluta dos nuclídeos citados.

2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 Reações de múltiplas capturas a partir do ^{165}Ho

Na figura 2.1 está apresentado o esquema da reação em cadeia de uma amostra de ^{165}Ho inserida no reator e os esquemas de decaimento das principais transições γ do $^{166m,g}\text{Ho}$ e ^{167}Ho . O diagrama foi retirado da referência [7] e os valores de meia-vida do $^{166m,g}\text{Ho}$ e ^{167}Ho foram atualizados [14,15,7].

Figura 2.1 – Diagrama da reação em cadeia do ^{165}Ho pela reação de captura de nêutron [7] e os esquemas de decaimento das principais transições γ do $^{166m,g}\text{Ho}$ e ^{167}Ho .



Fonte: Katoh, 2002^[7]. Adaptado pelo autor.

Na figura, destacam-se os nuclídeos mais importante para a produção de ^{167}Ho a partir do ^{165}Ho que é o ^{166}Ho (em seus dois estados, fundamental e metaestável) e o ^{167}Ho . Nas seções seguintes estão apresentadas mais

detalhadamente algumas características destes núclídeos como: os principais modos de produção; as seções de choque térmica; os esquemas de desintegração; as transições β^- e γ .

2.2 Características do ^{166m}Ho

O ^{166m}Ho se desintegra por decaimento β^- , com meia-vida de 1133 (8) anos, principalmente para os níveis de energias de 1827 keV e 1787 keV do ^{166}Er , como mostrado no esquema de desintegração na seção seguinte [14]. O principal modo de produção deste radionuclídeo é por meio da reação de captura radiativa com o seu isótopo estável (^{165}Ho) e a seção de choque térmica para a reação $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166m}\text{Ho}$ é de 3,5 b [5]. Na produção do ^{166m}Ho pela reação citada ocorre a presença de impureza de ^{166g}Ho que pode ser produzido pelo mesmo processo a partir do ^{165}Ho .

2.2.1 Esquema de desintegração

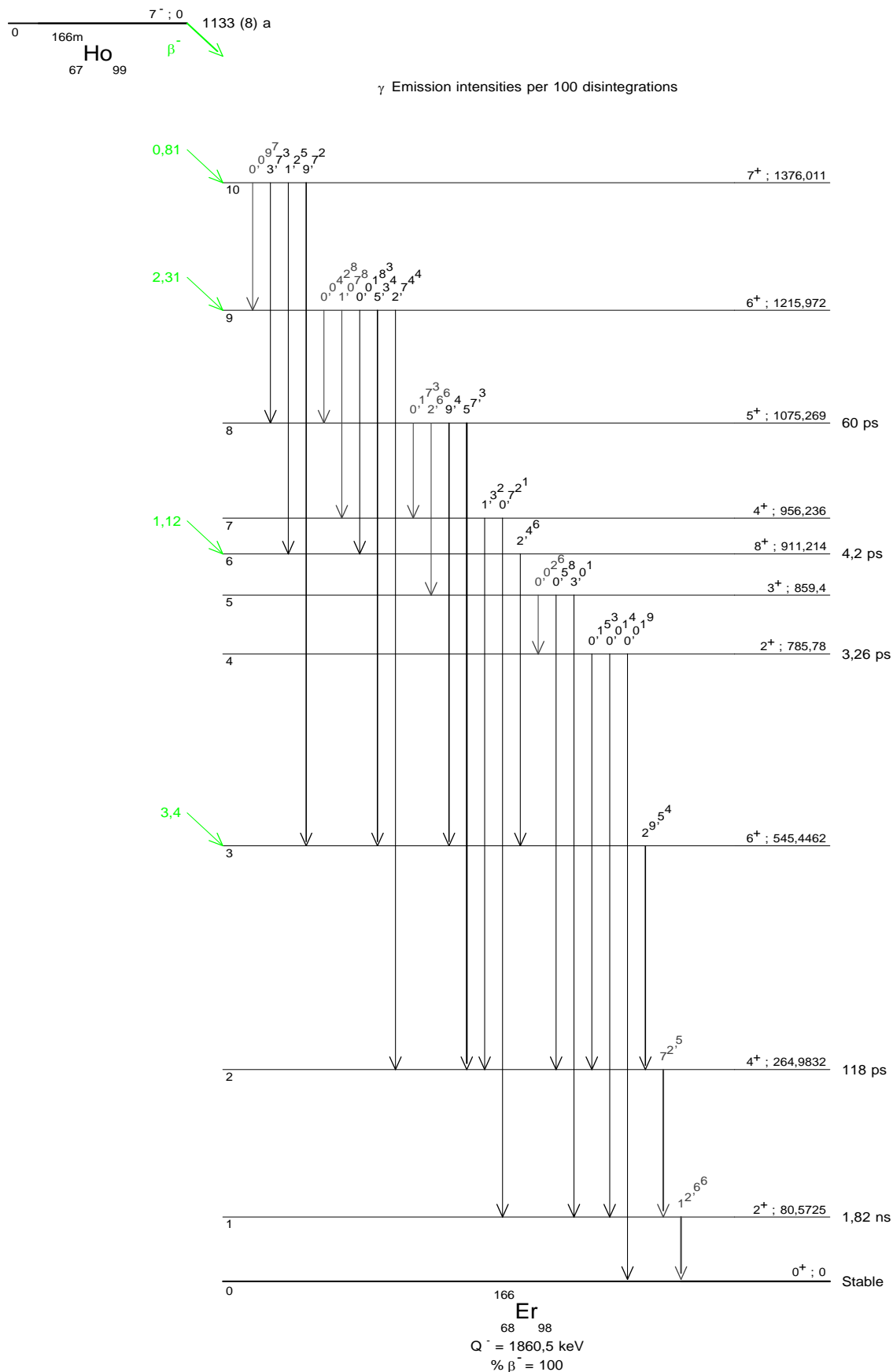
O esquema de desintegração do ^{166m}Ho com todos os estados excitados do ^{166}Er foi dividido em duas partes (figuras 2.2 e 2.3). Na figura 2.2 estão descritas as transições γ que partem do nível de energia de 1828 keV (nível 17) até as que partem do nível de energia de 1556 keV (nível 11). Na figura 2.3 estão apresentadas as transições dos níveis inferiores ao 11 (energia de 1376 keV). Todos os níveis de energia estão descritos em keV e as probabilidades estão apresentadas em porcentagem.

Pelas duas figuras, nota-se que há muitos valores de energia para as transições γ , indo de 73 a 1330 keV. Dentre os fótons de transição γ há pelo menos sete com probabilidades de emissão superior a 10% e valores de energia bem distanciados entre si, o que faz deste radionuclídeo uma fonte interessante para a calibração de detectores.

As probabilidades de emissão dos ramos β também estão apresentados nas figuras. Os que apresentam as maiores probabilidades são as transições $\beta_{0,17}^-$ e $\beta_{0,16}^-$ e estão descritas na figura 2.2. Somadas, elas correspondem a 92 % das probabilidades de emissão β , desintegrando-se para os níveis de energia de 1827 e 1789 keV, respectivamente, dos estados excitados do ^{166}Er .

Nas figuras (2.2 e 2.3) também estão apresentados os tempos de meia-vida de alguns estados excitados do ^{166}Er .

Figura 2.3 – Esquema de desintegração do ^{166m}Ho em que são apresentadas as transições dos níveis energias γ de 1376 keV a 80 keV. Os níveis de energia estão descritos em keV e os valores expostos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.



2.2.2 Transições β^-

Na Tabela 2.1 estão apresentados as possíveis transições β^- , as energias máximas e as suas respectivas probabilidades de emissão para o decaimento do ^{166m}Ho em ^{166}Er .

Tabela 2.1 – Energias máximas para as transições β^- do ^{166m}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão^[14]. Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia máx. [keV]	Probabilidade [%]
$\beta_{0,17}^-$	32,9 (9)	17,2 (4)
$\beta_{0,16}^-$	73,5 (9)	74,8 (12)
$\beta_{0,11}^-$	304,6 (9)	0,394 (5)
$\beta_{0,10}^-$	484,5 (9)	0,81 (26)
$\beta_{0,9}^-$	644,5 (9)	2,31 (29)
$\beta_{0,6}^-$	949,3 (9)	1,12 (6)
$\beta_{0,3}^-$	1315,1 (9)	3,4 (6)

2.2.3 Transições γ

O ^{166m}Ho possui emissão γ de muitas energias, na tabela 2.2 foram apresentadas apenas as que possuem intensidades de emissão superiores a 2%.

Tabela 2.2 – Energias das emissões γ do ^{166m}Ho e suas respectivas intensidades de emissão absolutas^[14]. Os números entre parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia [keV]	Intensidade [%]
$\gamma_{1,0}(Er)$	80,5725 (13)	12,66 (23)
$\gamma_{2,1}(Er)$	184,4107 (11)	72,5 (3)
$\gamma_{8,5}(Er)$	215,871 (7)	2,66 (17)
$\gamma_{3,2}(Er)$	280,4630 (23)	29,54 (25)
$\gamma_{10,8}(Er)$	300,741 (3)	3,73 (3)
$\gamma_{6,3}(Er)$	365,768 (6)	2,46 (4)
$\gamma_{16,10}(Er)$	410,956 (3)	11,35 (17)
$\gamma_{17,10}(Er)$	451,540 (4)	2,915 (14)
$\gamma_{8,3}(Er)$	529,825 (4)	9,4 (4)
$\gamma_{16,9}(Er)$	570,995 (5)	5,43 (20)
$\gamma_{9,3}(Er)$	670,526 (4)	5,34 (21)
$\gamma_{16,8}(Er)$	711,697 (3)	54,9 (9)
$\gamma_{17,8}(Er)$	752,280 (4)	12,2 (3)
$\gamma_{5,1}(Er)$	778,827 (6)	3,01 (8)
$\gamma_{8,2}(Er)$	810,286 (4)	57,3 (11)
$\gamma_{10,3}(Er)$	830,565 (4)	9,72 (18)
$\gamma_{9,2}(Er)$	950,988 (4)	2,744 (19)

2.3 Características do ^{166g}Ho

O ^{166g}Ho se desintegra por decaimento β^- , com meia-vida de 26,795 (29) horas para o ^{166}Er , como mostrado no esquema de desintegração, na seção seguinte [15]. O principal modo de produção deste radionuclídeo que tem influência direta nesse trabalho é por meio da reação de captura radiativa com o seu isótopo estável (^{165}Ho) e a seção de choque térmica para a reação $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166g}\text{Ho}$ é de 59,0 (21) b [16]. Na produção do ^{166g}Ho pela reação citada ocorre a presença de impureza de ^{166m}Ho que pode ser produzido pelo mesmo processo a partir do ^{165}Ho .

2.3.1 Esquema de desintegração

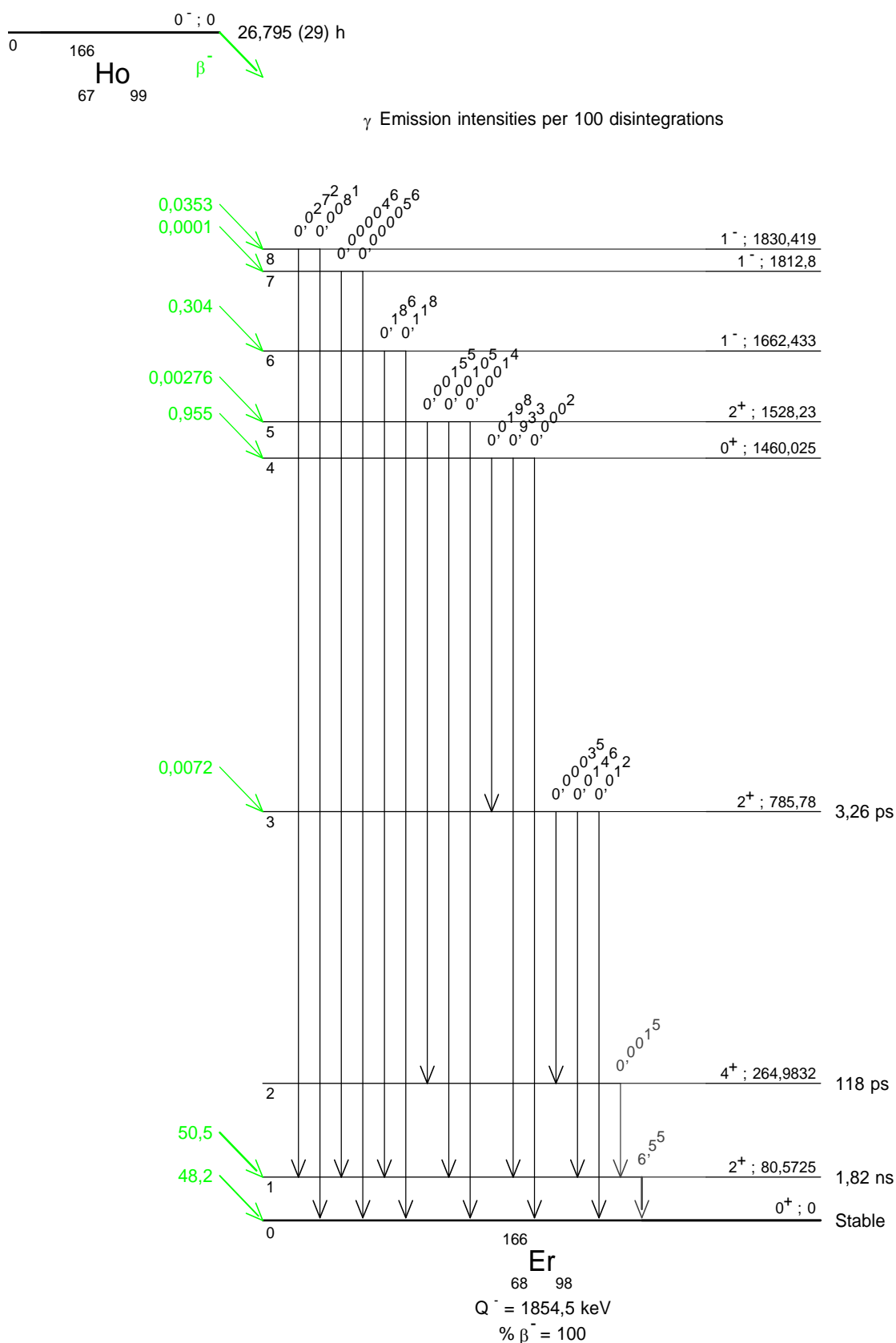
Na figura 2.4 está apresentado o esquema de desintegração do ^{166g}Ho , com todos os estados excitados. Os níveis de energia estão descritos em keV e as probabilidades em percentagem. O tempo de meia-vida de alguns estados excitados do ^{166}Er também estão descritos da figura.

Nota-se, pelo esquema, que há 17 transições γ com valores que vão de 80 a 1830 keV. A transição com maior probabilidade (6%) é a transição $\gamma_{1,0}$ (transição entre os níveis 1 e 0), com o valor de 80 keV que corresponde a mesma energia de um dos fótons de radiação γ emitidos pelo ^{166m}Ho no decaimento para o ^{166}Er .

As probabilidades de cada ramo β também estão apresentadas no esquema de desintegração da figura 2.4. Os ramos β que possuem maiores probabilidades de ocorrência são aqueles de alta energia, em que o núcleo filho está no primeiro nível excitado ou no estado fundamental. Ambas somadas totalizam 98,7% das probabilidades de ocorrência.

Como pode ser notado, os altos valores de probabilidades de transição para β de alta energia justifica o fato de serem pequenas as probabilidades de emissão γ , sendo todas menores que 1% e apenas uma com transição da ordem de 6% (transição $\gamma_{1,0}$).

Figura 2.4 – Esquema de desintegração do ^{166}Ho . Os níveis de energia estão apresentados em keV e os valores descritos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.



Fonte: Nucleide, 2019.^[15]

2.3.2 Transições β^-

Na Tabela 2.3 estão apresentados as possíveis transições β^- , as energias máximas e as suas respectivas probabilidades de emissão para o decaimento do ^{166}gHo em ^{166}Er .

Tabela 2.3 – Energias máximas para as transições β^- do ^{166}gHo e suas respectivas probabilidades de emissão ^[15]. Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia máx. [keV]	Probabilidade [%]
$\beta_{0,8}^-$	24,1 (9)	0,0353 (11)
$\beta_{0,7}^-$	41,7 (9)	0,00010 (3)
$\beta_{0,6}^-$	192,0 (9)	0,304 (7)
$\beta_{0,5}^-$	326,2 (9)	0,00276 (22)
$\beta_{0,4}^-$	394,5 (9)	0,955 (16)
$\beta_{0,3}^-$	1068,6 (9)	0,0072 (21)
$\beta_{0,1}^-$	1773,9 (9)	50,5 (15)
$\beta_{0,0}^-$	1854,5 (9)	48,2 (15)

2.3.3 Transições γ

Na tabela 2.4 estão apresentadas as energias de emissão γ do ^{166}gHo e suas respectivas intensidades de emissão.

Tabela 2.4 – Energias das emissões γ do ^{166}gHo e suas respectivas intensidades de emissão absolutas ^[15]. Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia [keV]	Probabilidade [%]
$\gamma_{1,0}(\text{Er})$	80,5725 (13)	6,55 (8)
$\gamma_{2,1}(\text{Er})$	184,4107 (11)	0,0015 (7)
$\gamma_{3,2}(\text{Er})$	520,80 (7)	0,00035 (2)
$\gamma_{4,3}(\text{Er})$	674,24 (7)	0,0198 (17)
$\gamma_{3,1}(\text{Er})$	705,21 (7)	0,0146 (12)
$\gamma_{3,0}(\text{Er})$	785,78 (7)	0,0120 (3)
$\gamma_{5,2}(\text{Er})$	1263,24 (15)	0,00155 (9)
$\gamma_{4,1}(\text{Er})$	1379,446 (10)	0,933 (35)
$\gamma_{5,1}(\text{Er})$	1447,66 (15)	0,00105 (10)
$\gamma_{4,0}(\text{Er})$	1460,018 (10)	0,0002
$\gamma_{5,0}(\text{Er})$	1528,235 (15)	0,00014 (5)
$\gamma_{6,1}(\text{Er})$	1581,852 (15)	0,186 (4)
$\gamma_{6,0}(\text{Er})$	1662,424 (15)	0,118 (5)
$\gamma_{7,1}(\text{Er})$	1732,2 (5)	0,000046 (20)
$\gamma_{8,1}(\text{Er})$	1749,837 (14)	0,0272 (10)
$\gamma_{7,0}(\text{Er})$	1812,8 (5)	0,000056 (19)
$\gamma_{8,0}(\text{Er})$	1830,408 (24)	0,0081 (2)

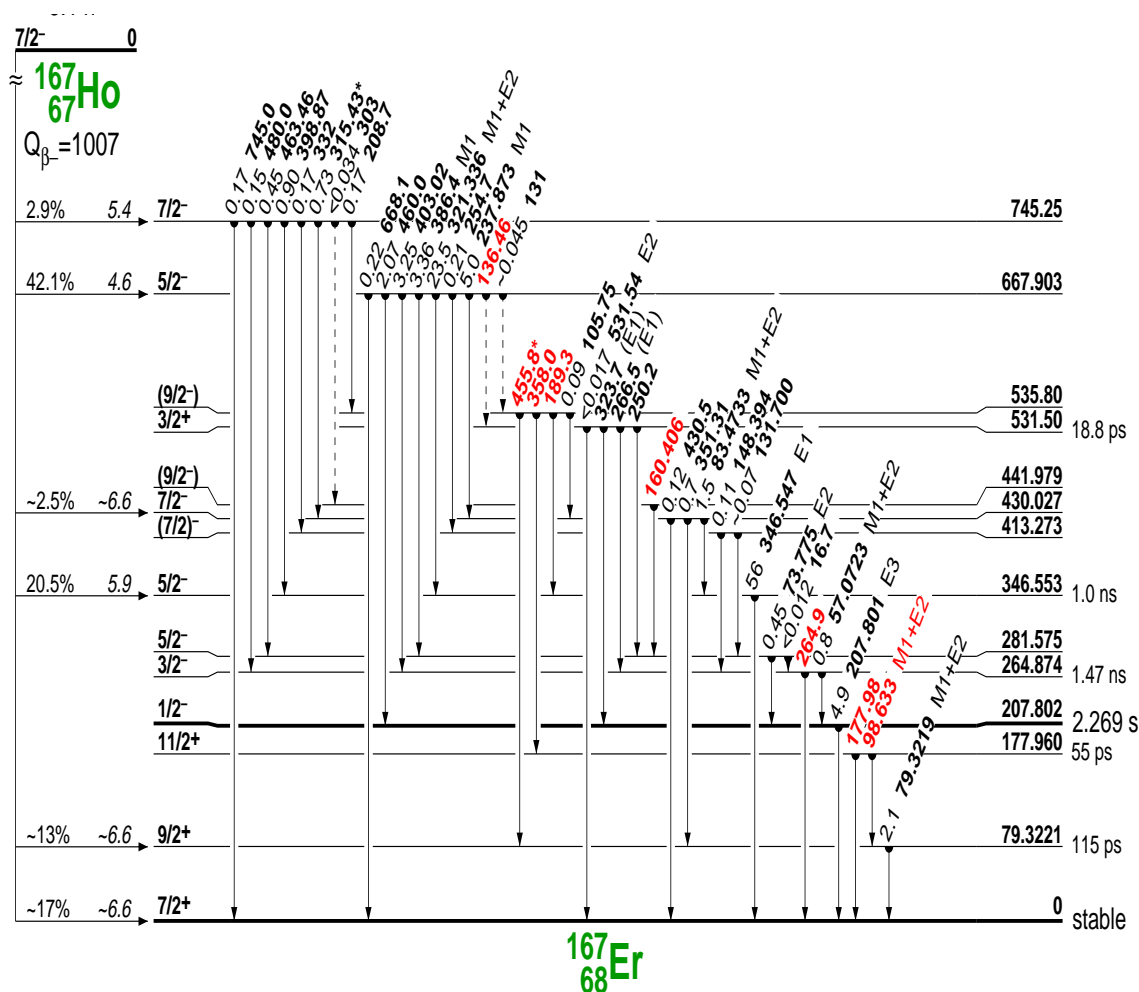
2.4 Características do ^{167}Ho

O ^{167}Ho se desintegra por decaimento β^- , com meia-vida de 3,003 (18) horas para o ^{167}Er , como mostrado no esquema de desintegração na seção seguinte^[7]. Um dos principais modos de produção deste radionuclídeo é pela captura radiativa nos núcleos de $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e $^{166\text{g}}\text{Ho}$.

2.4.1 Esquema de desintegração

Na figura 2.5 está apresentado o esquema de desintegração do ^{167}Ho , com todos os estados excitados. Os níveis de energia estão descritos em keV e as probabilidades em porcentagem. O tempo de meia-vida de alguns estados excitados do ^{166}Er também estão descritos da figura.

Figura 2.5 – Esquema de desintegração do ^{167}Ho . Os níveis de energia estão apresentados em keV e os valores descritos acima das transições correspondem às probabilidades, em porcentagem.



Fonte: *Table of Isotopes*, 1997.^[17]

Nota-se, pelo esquema, que há muitas transições γ com valores que vão de 80 a 745 keV. A transição com maior probabilidade (56%^[17]) é a transição $\gamma_{6,0}$ (transição entre os níveis 6 e 0), com o valor de 347 keV. Por esta razão, esta foi a transição escolhida para a determinação da intensidade de emissão gama absoluta.

2.4.2 Transições β^-

Na Tabela 2.5 estão apresentados as possíveis transições β^- , as energias máximas e as suas respectivas probabilidades de emissão para o decaimento do ^{167}Ho em ^{167}Er .

Tabela 2.5 – Energias máximas para as transições β^- do ^{167}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão^[17]. Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia máx. [keV]	Probabilidade [%]
$\beta_{0,13}^-$	262 (5)	2,9
$\beta_{0,12}^-$	339 (5)	42,1
$\beta_{0,8}^-$	577 (5)	2,5
$\beta_{0,6}^-$	661 (5)	20,5
$\beta_{0,1}^-$	928 (5)	13
$\beta_{0,0}^-$	1007 (5)	17

2.4.3 Transições γ

O ^{167}Ho possui emissão γ de muitas energias, porém a maioria delas possui baixa probabilidade de emissão, na tabela 2.6 foram descritas apenas as que possuem probabilidade de emissão superior a 1%. Observa-se a elevada incerteza que apresentam os dados da literatura.

Tabela 2.6 – Energias das emissões γ do ^{167}Ho e suas respectivas probabilidades de emissão absoluta^[17]. Os números em parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

	Energia [keV]	Probabilidade [%]
$\gamma_{1,0}(\text{Er})$	79,3 (2)	2,1 (7)
$\gamma_{8,6}(\text{Er})$	83,5 (2)	1,5 (5)
$\gamma_{4,0}(\text{Er})$	207,8 (2)	4,9 (11)
$\gamma_{12,8}(\text{Er})$	237,9 (2)	5,0 (11)
$\gamma_{12,6}(\text{Er})$	321,3 (2)	24 (5)
$\gamma_{6,0}(\text{Er})$	346,5 (2)	56 (12)
$\gamma_{12,5}(\text{Er})$	386,2 (2)	3,4 (7)
$\gamma_{12,4}(\text{Er})$	403,0 (2)	3,2 (7)
$\gamma_{12,3}(\text{Er})$	460,0 (2)	2,1 (5)

2.5 Medida de intensidade de emissão γ absoluta

É possível se determinar a intensidade γ absoluta para uma energia específica de um determinado radionuclídeo analisando-se o seu esquema de desintegração completo e levando-se em consideração todas as probabilidades das transições entre todos os seus níveis excitados. Quanto melhor for o conhecimento destas transições, melhor será a determinação da intensidade requerida.

Outra possibilidade é a medida da atividade da amostra contendo o radionuclídeo de interesse em sistema absoluto, associada a medida de radiação γ . Este foi o método utilizado neste trabalho. A relação que associa medidas está descrita na equação 2.1^[18]:

$$I_{\gamma} = \frac{S}{A \epsilon_{\gamma} t_m} \quad (2.1)$$

Em que:

I_{γ} é a intensidade de emissão γ ;

S é a área sob a curva do pico de absorção total da energia de interesse, já corrigida para tempo morto, decaimento, soma em cascata, atenuação e geometria;

t_m é o tempo de medida utilizado para obtenção da área do pico de absorção total;

A é a atividade da amostra; e,

ϵ_{γ} é a eficiência de detecção da radiação γ .

2.6 Método de coincidência

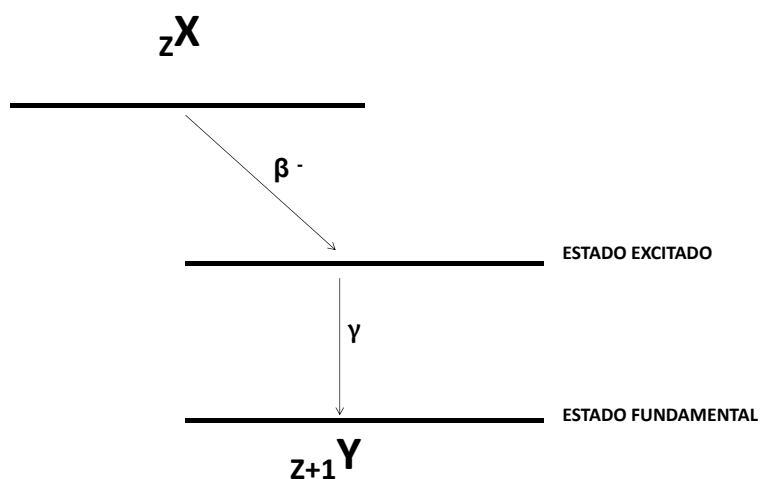
O método de coincidência^[11] é um método associado a padronização de fontes radioativas por não haver necessidade de conhecimento prévio de nenhum outro experimento, sendo aplicável para qualquer radionuclídeo que se desintegre pela emissão de ao menos duas radiações coincidentes como β - γ ou α - γ , por exemplo.

Para a sua aplicação são necessários ao menos dois detectores, um para cada tipo de radiação, que estejam posicionados de forma que possibilite a observação das radiações coincidentes.

Para definir as expressões que possibilitam a determinação da atividade de uma fonte por este método, pode-se considerar um esquema de desintegração simples em que ocorre a emissão de uma partícula β seguindo de uma emissão γ ,

como exemplificado na figura 2.6.

Figura 2.6 – Esquema de desintegração simplificado. O nuclídeo pai (X) com número de prótons Z, decai para o estado excitado por emissão β^- e em seguida emite radiação γ chegando ao estado fundamental do núcleo filho (Y).



Fonte: Acervo pessoal, 2019.

As taxas de desintegrações para o caso proposto são as seguintes:

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

$$N_{\beta} = N_0 \epsilon_{\beta} \quad (2.3)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_{\gamma} \epsilon_{\beta} \quad (2.4)$$

Em que:

N_0 é a atividade da fonte;

N_{γ} é a taxa das emissões γ ;

N_{β} é a taxa das emissões β ;

N_c é a taxa das contagens em coincidência;

ϵ_{γ} é a eficiência de detecção γ ; e,

ϵ_{β} é a eficiência de detecção β .

Dividindo a equação 2.4 pela equação 2.2, obtém-se uma expressão para o cálculo da eficiência β .

$$\epsilon_{\beta} = \frac{N_c}{N_{\gamma}} \quad (2.5)$$

Substituindo a equação 2.5 na equação 2.3 obtém-se a seguinte expressão:

$$N_0 = \frac{N_{\gamma} N_{\beta}}{N_c} \quad (2.6)$$

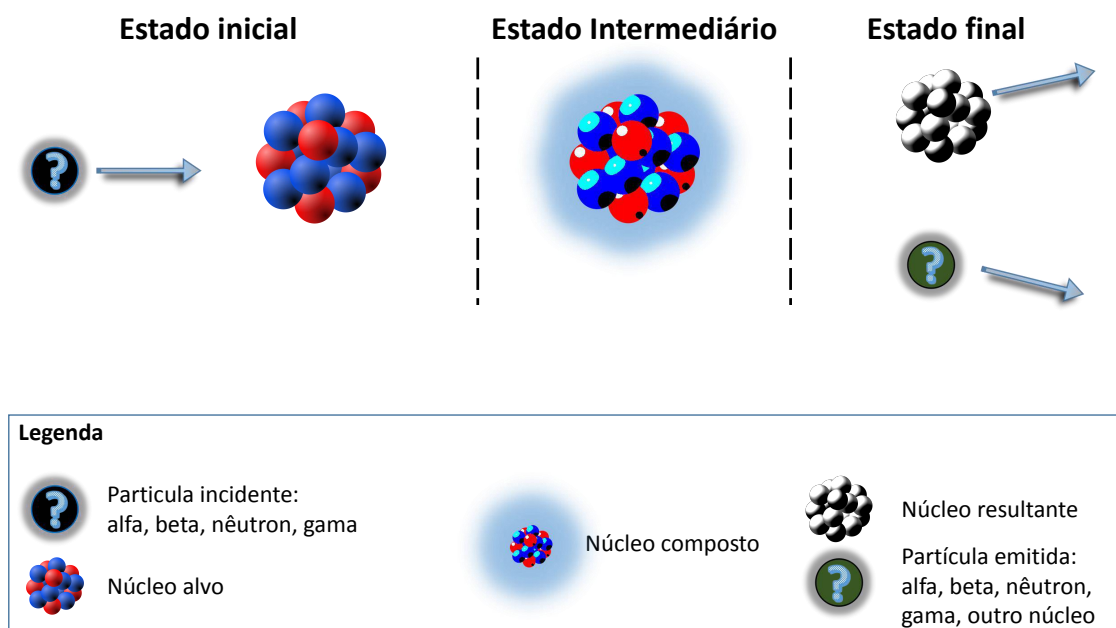
Pela equação 2.6 é possível calcular a atividade de uma fonte apenas com as contagens de cada detector e as contagens em coincidência, sem a necessidade de qualquer outra medida ou conhecimentos sobre as eficiências de detecção de nenhum dos tipos de radiações. A equação 2.6 corresponde a um esquema de desintegração simples, como apresentado na figura 2.6. Para esquemas mais complexos, as equações tornam-se bem mais elaboradas, como descritas por Champion^[19] e Baerg^[20].

2.7 Seção de choque

Ao incidir um feixe de partículas sobre um alvo, constituído por vários núcleos, estas partículas podem atravessar o alvo sem qualquer interação ou pode ocorrer a absorção da partícula incidente por um destes núcleos formando um núcleo composto. O núcleo composto corresponde ao estado intermediário da reação devido à alta instabilidade. Para se chegar à estabilidade, este núcleo se converte em um núcleo residual, emitindo uma ou mais partículas que podem ter a mesma natureza ou diversa daquela incidente, dentre as quais podemos citar como exemplo, a partícula alfa, a partícula β , fóton γ , próton, nêutron ou um núcleo de outro elemento, no caso de uma reação de fissão. Todo o processo descrito, desde a incidência até a emissão da partícula (ou fissão), é chamado de reação nuclear (Fig.2.7).

Os diferentes tipos de reações nucleares dependem da partícula incidente, sua energia e do número de massa do núcleo alvo. Neste trabalho, as partículas incidentes utilizadas foram os nêutrons.

Figura 2.7 – Representação artística de uma reação nuclear genérica em três fases.



Fonte: Acervo pessoal, 2019.

A taxa das reações nucleares provocadas por um feixe monoenergético de nêutrons que incide perpendicularmente sobre um material e dado por^[21]:

$$R = N_0 \phi \sigma \quad (2.7)$$

em que:

N_0 = número de átomos do alvo, por unidade de volume;

ϕ = fluxo de nêutrons que atravessam perpendicularmente o material do alvo por unidade de área e por unidade de tempo; e,

σ = seção de choque microscópica total.

A seção de choque microscópica é uma constante de proporcionalidade que possui dimensão de área e que exprime a probabilidade de ocorrência de uma determinada reação nuclear. A sua unidade é dada em barn (b) que equivale a 10^{-28} m^2 . Na equação 2.7 está descrita a seção de choque total que é a soma de todos os tipos de seções de choque de absorção e espalhamento.

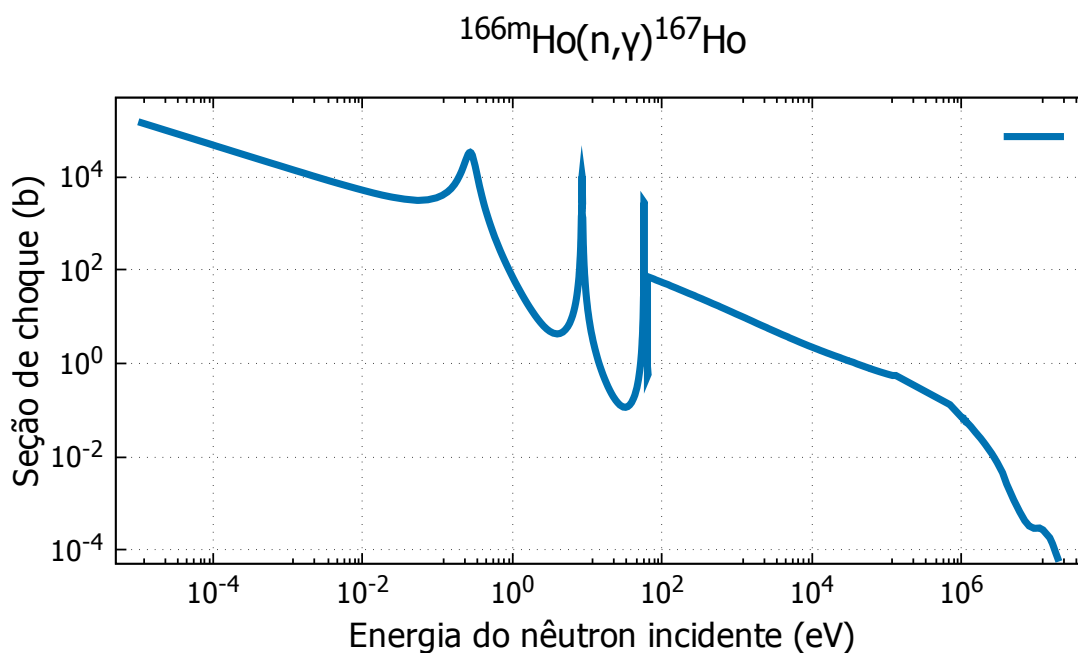
2.7.1 Seção de choque para reação de captura radiativa (n,γ)

No caso da reação por captura radiativa (n,γ), como a probabilidade de captura do nêutron está associada ao tempo em que ele permanece nas

proximidades do núcleo, o comportamento característico da seção de choque é $1/v$, onde v é a velocidade do nêutron. Entretanto, esta característica não é observada para todos os nuclídeos. Há determinadas faixas de energias em que certos nuclídeos apresentam picos característicos de ressonância e que variam dependendo do núcleo alvo^[11].

Na figura 2.8 é apresentado o gráfico da seção de choque para a reação de interesse neste trabalho, com dados extraídos do *Nacional Nuclear Data Center* (NNDC)^[22], exemplificando a variação da seção de choque em função da energia do nêutron incidente.

Figura 2.8 – Seção de choque em função da energia do nêutron para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$.



Fonte: NNDC, 2019.^[22]

Da figura, nota-se que a seção de choque obedece a lei $1/v$, tendo alguns picos característicos de ressonância na região dos nêutrons epitérmicos (região central) e uma ressonância no final da região térmica.

O comportamento $1/v$ da seção de choque para a reação de captura radiativa (n, γ), assim como observado no exemplo da figura 2.8, é muito comum para muitos nuclídeos. Portanto, para facilitar a comunicação dos dados de seção de choque entre a comunidade científica, convencionou-se a utilização da seção de choque para a velocidade dos nêutrons de 2200 m/s que equivale a temperatura de 293,6 K^[11]. A seção de choque para essa temperatura de nêutron é chamada

de seção de choque térmica (σ_0). Para a região epitérmica, em que normalmente há ressonâncias, a seção de choque apresentada se refere à integral da seção de choque nessa região e é chamada de integral de ressonância (I_0).

Considerando que a taxa de fluência de nêutrons (fluxo) e a seção de choque descritas na equação 2.7 dependem da energia do nêutron, esta equação poderia ser reescrita da seguinte maneira ^[11]:

$$R = N_0 \int \phi(E) \sigma(E) dE \quad (2.8)$$

Sendo predominante a influência de nêutrons térmicos e epitérmicos na reação (n, γ), a taxa de reações produzidas apresentada na equação 2.8 pode ser representada pela soma de duas taxas independentes referentes a taxa de reações produzidas por nêutrons térmicos (R_t) e epitérmicos (R_{epi}) e os limites de integração em cada uma correspondem as energias de suas respectivas regiões. Na equação 2.9 está apresentada esta substituição em que, na região térmica, foi utilizada a seção de choque térmica média (σ_t) e a integral de ressonância (I_0).

$$R = R_t + R_{epi} = N_0(\phi_t \sigma_t + \phi_{epi} I_0) \quad (2.9)$$

em que:

ϕ_t = fluxo de nêutrons térmicos;

ϕ_{epi} = fluxo de nêutrons epitérmicos, dividido por $\ln(E_1/E_2)$; e,

E_1 e E_2 correspondem aos limites de energia inferior e superior da região epitérmica.

O limite inferior da integral que corresponde a parte epitérmica (E_1) está associado à energia do corte de cádmio e também às características do reator, sendo expresso em μkT , em que $\mu \approx 5$ para reatores moderados a água, que foi o utilizado neste trabalho^[11]. O limite superior da integral (E_2) normalmente é definido como igual a 2 MeV.

2.8 Determinação do fluxo

Para se determinar o fluxo de nêutrons é importante levar em consideração as características do material que será usado para a sua determinação em cada região de interesse. O conhecimento da seção de choque com boa exatidão

é de extrema importância para a determinação do fluxo. Quando a seção de choque tem o comportamento segundo a lei- $1/v$, simplificam-se os cálculos para a obtenção do valor do fluxo. Porém, como a maioria dos materiais não tem esse comportamento é necessária a aplicação de algumas correções^[11].

O equação que determina o fluxo é a seguinte^[11]:

$$\phi = \frac{A}{N_0 \hat{\sigma} f_{irr} f_e} \quad (2.10)$$

em que:

A é a atividade do alvo utilizado para a determinação do fluxo;

N_0 é o número de átomos do alvo;

$\hat{\sigma}$ é a seção de choque efetiva;

f_{irr} é o fator de correção devido ao tempo de irradiação; e,

f_e é o fator de correção devido ao tempo de espera.

Neste trabalho, foi utilizada a convenção de Westcott para as correções da seção choque. Quando o seu comportamento segue a lei- $1/v$, resulta que:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0$$

Para os outros casos, a seção de choque é definida da seguinte forma^[23]:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs) \quad (2.11)$$

em que:

g é o fator de Westcott para o afastamento da lei- $1/v$ da seção de choque na região térmica;

r é a fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico, e;

s é o fator de Westcott para o afastamento da lei- $1/v$ da seção de choque na região epitérmica.

2.8.1 Fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico (r)

Para a determinação de r foi utilizado o *Método de Diferença de Cádmi*^[24] que é baseado na irradiação de dois alvos de mesma composição, sendo um envolto

em Cd e o outro não. A razão entre a atividade das duas amostras é chamada de razão de cádmio (R_{Cd}) e é definida como:

$$R_{Cd} = \frac{A_s}{A_{Cd}} \quad (2.12)$$

em que:

A_s é a atividade da amostra sem a cobertura de Cd; e,

A_{Cd} é a atividade com a cobertura de Cd.

A razão de cádmio se relaciona com a fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico, quando o material a ser irradiado se afasta levemente do comportamento $1/v$, de acordo com a seguinte equação^[23]:

$$R_{Cd} = (g + rs) \left[rs + \frac{r}{k_\delta} \sqrt{\frac{T}{T_0}} \right]^{-1} \quad (2.13)$$

em que:

R_{Cd} é a razão de cádmio segundo a equação 2.12;

g é o fator de Westcott para o afastamento da lei- $1/v$ da seção de choque na região térmica;

r é a fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico;

s é o fator de Westcott para o afastamento da lei- $1/v$ da seção de choque na região epitérmica;

T é a temperatura do nêutron;

T_0 é a temperatura de referência equivalente a 293,6 K; e,

k_δ é o coeficiente tabelado por Westcott^[23] que relaciona a razão de cádmio (R_{Cd}) e a fração de nêutrons intermediários (r) para uma espessura específica de folha de cádmio.

Quando a temperatura do nêutron é incerta, é mais comum se obter a quantidade de $r\sqrt{T/T_0}$ ao invés de r . Quando se trata do corte de Cd real, a expressão utilizada é a seguinte^[23]:

$$r\sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{g}{R_{Cd} [s_0 - k_\delta] - s_0} \quad (2.14)$$

E s_0 se relaciona com s de acordo com a expressão a seguir^[23]:

$$s_0 = s \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (2.15)$$

2.8.2 Cálculo do fluxo térmico ϕ_t

O fluxo convencional ϕ_0 foi calculado neste trabalho de acordo com a expressão proposta por Bothe^[25], que leva em consideração todos os fatores de correção, conforme apresentada a seguir^[11]:

$$\phi_0 = n v_0 = \frac{(A_s - F_{Cd} A_{Cd}) R'}{F N_0 \sigma_0 (g - r s') (R' - 1)} \quad (2.16)$$

em que:

A_s é a atividade do alvo sem a cobertura de Cd;

A_{Cd} é a atividade do com alvo com a cobertura de Cd;

F_{Cd} é o fator de Cd, que corrige a transmissão do Cd, em relação a um filtro ideal;

F é o fator de correção para a perturbação de fluxo térmico causada pela presença da folha. Esta correção foi calculada por meio do programa MATSSF^[26];

N_0 é o número de átomos do alvo;

σ_0 é a seção de choque térmica do alvo;

g é o fator de Westcott que corrige o afastamento do comportamento $1/v$ da seção de choque efetiva Maxwelliana;

r é a fração de nêutrons epitérmicos no fluxo térmico;

s' é o fator de Westcott para o afastamento da lei- $1/v$ da seção de choque na região epitérmica, referente a integração entre μkT e a energia de corte de Cd (E_{Cd}), e;

$\frac{R'}{R'-1}$ é a razão entre a densidade de nêutrons total e a de subcádmio.

A partir do cálculo de ϕ_0 é possível calcular o fluxo térmico ϕ_t segundo a equação^[11]:

$$\phi_t = \phi_0 \sqrt{\frac{4 T}{\pi T_0}} \quad (2.17)$$

2.8.3 Cálculo do fluxo epitérmico ϕ_{epi}

O fluxo epitérmico deste trabalho foi cálculo segundo a seguinte equação^[11]:

$$\phi_{epi} = \theta \int_{E_1}^{E_2} \frac{1}{E^{1+\alpha}} dE \quad (2.18)$$

em que:

E_1 e E_2 são os limites de integração da integral de ressonância da região epitérmica;

α é fator de afastamento do comportamento $1/E$ do fluxo epitérmico; e,

θ é a constante definida por:

$$\theta = \frac{R}{N_0 I_0}$$

em que:

R é a taxa de reação induzido por nêutrons epitérmicos;

N_0 é o número de átomos do alvo; e,

I_0 é a integral de ressonância.

Substituindo a taxa de reação R pela atividade do alvo com Cd A_{Cd} e aplicando o fator de correção para a depressão da densidade de fluxo e de autoabsorção no alvo G_{epi} , a expressão para o cálculo do fluxo epitérmico fica da seguinte maneira:

$$\phi_{epi} = \frac{A_{Cd}}{N_0 G_{epi} I_0} \int_{E_1}^{E_2} \frac{1}{E^{1+\alpha}} dE \quad (2.19)$$

2.9 Formalismo de Ativação

A expressão que determina a atividade induzida numa amostra a partir da interação com nêutrons varia de acordo com o tipo de núcleo alvo que está sendo utilizado.

Neste trabalho foram utilizados dois tipos de reação. Uma em que o núcleo alvo é estável e, portanto, o número de átomos na amostra é constante e outra em que o núcleo alvo é radioativo.

O primeiro caso, em que o núcleo-alvo é estável, foi utilizado para a determinação do fluxo de nêutrons a partir da variação do número de átomos do núcleo produto. O núcleo produto (radioativo) varia com o tempo de acordo com a sua produção e o seu decaimento, segundo a seguinte equação:

$$\frac{dN_0}{dt} = R - \lambda_1 N_1 \quad (2.20)$$

em que:

N_0 é o número de átomos estáveis do núcleo alvo presentes na amostra;

N_1 é o número de átomos radioativos do núcleo produto presentes na amostra;

λ_1 é a constante de decaimento do núcleo produto, e;

R é a taxa de reação.

Reescrevendo a equação anterior e substituindo o taxa de reação (R) baseado na equação 2.7.

$$\frac{dN_0}{dt} = N_0 \sigma_0 \phi - \lambda_1 N_1 \quad (2.21)$$

em que:

σ_0 é a seção de choque de absorção do núcleo alvo, e;

ϕ é o fluxo de nêutrons que atinge o núcleo alvo.

Resolvendo a equação diferencial anterior para um tempo de irradiação t_{irr} , obtém-se a expressão para a atividade induzida A_1 :

$$A_1 = \lambda_1 N_1 = N_0 \sigma_0 \phi (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) \quad (2.22)$$

A partir do conhecimento dos outros termos desta equação e as atividades dos monitores com Cd e sem Cd é possível determinar os fluxos térmicos e epitérmicos, após aplicar as devidas correções.

Para a outra situação, em que o núcleo alvo é radioativo, que é o caso da medida de seção de choque e integral de ressonância deste trabalho, o cálculo da variação do núcleo produto se dá da seguinte forma:

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1 \sigma_1 \phi - \lambda_1 N_1 = -(\lambda_1 + \sigma_1 \phi)N_1 \quad (2.23)$$

em que:

N_1 é o número de átomos do núcleo alvo, e;

σ_1 é a seção de choque de absorção do núcleo alvo.

O número de átomos do núcleo alvo (N_1) para um tempo de irradiação t_{irr} é dado por^[11]:

$$N_1 = N_1^0 e^{[-(\lambda_1 + \sigma_1 \phi)t_{irr}]} \quad (2.24)$$

Em que N_1^0 é o número de átomos do núcleo alvo presentes inicialmente na amostra.

A variação do número de átomos do núcleo produto (N_2) no decorrer do tempo se determina a partir da seguinte expressão:

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 \sigma_1 \phi - \lambda_2 N_2 \quad (2.25)$$

Em que λ_2 é a constante de decaimento do núcleo produto.

Resolvendo esta equação diferencial para um tempo de irradiação t_{irr} , resulta em:

$$A_2 = \lambda_2 N_2 = \lambda_2 \sigma_1 \phi N_1^0 \frac{e^{[-(\lambda_1 + \sigma_1 \phi)t_{irr}]} - e^{[-\lambda_2 t_{irr}]} }{\lambda_2 - (\lambda_1 + \sigma_1 \phi)} \quad (2.26)$$

A equação 2.26 é geral para os casos em que há uma amostra contendo apenas o núcleo alvo radioativo e este é irradiado. A expressão completa para o caso específico deste trabalho, considerando até a tripla captura, foi desenvolvida e está apresentada no apêndice deste texto. Porém, para os cálculos realizados neste

trabalho e apresentados na seção 4.2.5, foi utilizada uma aproximação da equação 2.26, com as devidas correções necessárias, pois esta apresenta exatidão suficiente para as incertezas envolvidas.

2.10 Formalismo de Westcott

Neste trabalho foi utilizado o formalismo de Westcott^[27] para a determinação da seção de choque térmica, Integral de Ressonância e valores de fluxos, que correspondem à segunda parte deste trabalho, assim como as suas correções.

Segundo a convenção de Westcott, a seção de choque efetiva ($\hat{\sigma}$) é definida pela expressão^[27]:

$$\hat{\sigma} = \frac{\int_0^{\infty} \sigma(v) n(v) v dv}{v_0 \int_0^{\infty} n(v) dv} \quad (2.27)$$

Na expressão 2.27, $n(v)$ é a função de distribuição da densidade do espectro de nêutrons em função da velocidade, $\sigma(v)$ é a seção de choque em função da velocidade do nêutron e v_0 é a velocidade do nêutron correspondente a 2200 m/s.

O espectro de nêutrons considerado neste formalismo pode ser dado por^[27]:

$$n(v) = \frac{4n}{\sqrt{\pi}} \left\{ \left[1 - \frac{4r}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\infty} \left(\frac{v_T}{v^2} \right) \Delta dv \right] \frac{v^2}{v_T^3} e^{-(v/v_T)^2} + \frac{r v_T}{v^2} \Delta \right\} \quad (2.28)$$

em que:

n é a densidade total de nêutrons;

r é o índice epitérmico e representa o peso relativo da componente epitérmica dE/E do espectro de nêutrons, em que $r = 0$ para um espectro puramente maxwelliano^[23];

Δ é a função de corte considerada; e,

v_T é a velocidade mais provável do nêutron no meio moderador correspondente ao máximo da distribuição Maxwelliana.

A velocidade mais provável (v_T) pode ser definida como^[11]:

$$v_T = \left(\frac{2 k T}{m} \right)^{1/2} \quad (2.29)$$

em que:

k é a constante de Boltzmann,

m é a massa do nêutron e

T é a temperatura do meio moderador.

Para a temperatura $T_0 = 293,6$ K, a velocidade mais provável $v_T = v_0$, com isso pode-se definir v_T como:

$$v_T = v_0 \left(\frac{T}{T_0} \right)^{1/2} \quad (2.30)$$

Para esse valor de temperatura T_0 há uma energia térmica associada ($E_0 = k T_0$) equivalente a 0,0253 eV.

A função de densidade de nêutrons descrita na equação 2.28 também pode ser escrita em função da energia do nêutron. Na equação a seguir está apresentada a densidade de nêutrons em função da energia ($n'(E)$) para uma distribuição maxwelliana ($r = 0$)^[28]:

$$n'(E) = \frac{2n}{E_0^{3/2} \sqrt{\pi}} E^{1/2} \cdot e^{-\frac{E}{E_0}} \quad (2.31)$$

O fluxo convencional de nêutrons é definido a partir de nêutrons com velocidade v_0 ^[11]:

$$\phi_0 = n v_0 \quad (2.32)$$

A seção de choque térmica é definida como a seção de choque para nêutrons com energia E_0 e é o valor adotado como referência para este dado nuclear, pela comunidade científica. Portanto,

$$\sigma_0 = \sigma(v_0) \quad (2.33)$$

A relação entre a seção de choque efetiva ($\hat{\sigma}$) e a seção de choque térmica (σ_0) é dada pela seguinte expressão^[27]:

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + r s) \quad (2.34)$$

Na equação 2.34, g e s são os fatores de Westcott. Esses fatores são aplicados para corrigir o afastamento da lei $1/v$ da seção de choque. Quando a seção de choque apresenta o comportamento puramente $1/v$, resulta em $g = 1$ e $s = 0$.

O fator- g de Westcott é a razão para o afastamento do comportamento $1/v$ da seção de choque efetiva Maxwelliana ($\hat{\sigma}_m$) por influência da temperatura e pode ser definido como a razão entre esta e a seção de choque térmica puramente $1/v$ (σ_0). Então, o fator- g é expresso como:

$$g = \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} \quad (2.35)$$

A seção de choque média ($\bar{\sigma}$) e a velocidade média (\bar{v}) do nêutron para uma distribuição puramente Maxwelliana, podem ser definidas da seguinte forma^[27]:

$$\bar{\sigma} = \frac{\int \sigma(v) n(v) v dv}{\int n(v) v dv} \quad (2.36)$$

$$\bar{v} = v_0 \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} \quad (2.37)$$

A relação entre as seções de choque efetiva e média com o fator- g de Westcott estão descritas na equação 2.38^[27]:

$$\bar{\sigma} = \sqrt{\frac{\pi T_0}{4T}} \hat{\sigma} = g \sqrt{\frac{\pi T_0}{4T}} \sigma_0 \quad (2.38)$$

Os cálculos para a taxa de reação (R) podem ser realizados utilizando tanto a seção de choque efetiva como a média da seguinte forma^[27]:

$$R = n v_0 \hat{\sigma} = n \bar{v} \bar{\sigma} \quad (2.39)$$

Segundo o trabalho de Westcott^[27], para o caso em que se calcula a seção de choque de espalhamento (σ_s) pode-se utilizar a relação $\bar{\sigma}_s = (\sigma_s)_0$, pois ela não depende da energia do nêutron, enquanto que a $\hat{\sigma}$ varia com a temperatura. Porém para o cálculo de taxa de reação como apresentado na equação 2.39, é recomendável a utilização da seção de choque efetiva, pois, se o espectro de nêutrons não se comportar como uma distribuição Maxwelliana ($r \neq 0$), os poucos nêutrons rápidos presentes no espectro de nêutrons terão uma grande contribuição para a quantidade $n\bar{v}$, requerendo o exato conhecimento do espectro de nêutrons para altas energias para que a $\bar{\sigma}$ possa ser utilizada.

O fluxo térmico real na temperatura do meio moderador é definida a partir da densidade de nêutrons térmicos (n_t) e da velocidade média dos nêutrons (\bar{v}) no meio:

$$\phi = n_t \bar{v} \quad (2.40)$$

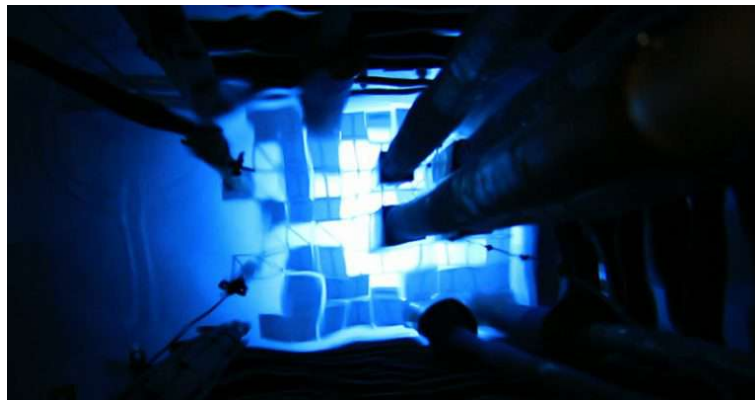
3 PARTE EXPERIMENTAL

3.1 Reator IEA-R1

As irradiações das amostras em todas as partes deste trabalho foram efetuadas no reator IEA-R1 que está instalado no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), dentro do Centro do Reator de Pesquisas (CERPq), em São Paulo.

O Reator IEA-R1 é um reator de pesquisa tipo piscina, moderado e refrigerado à água leve e que opera com potência de 4,5 MW. O núcleo deste reator (figura 3.1) tem o formato de um paralelepípedo, composto por uma placa matriz de dimensões 82,86 cm x 63,97 cm x 11,43 cm, que fica suspensa por uma estrutura de alumínio. A placa matriz possui 80 furos organizados no formato 8 x 10 onde se encaixam elementos combustíveis e elementos refletores^[29].

Figura 3.1 – Imagem do núcleo do reator IEA-R1.

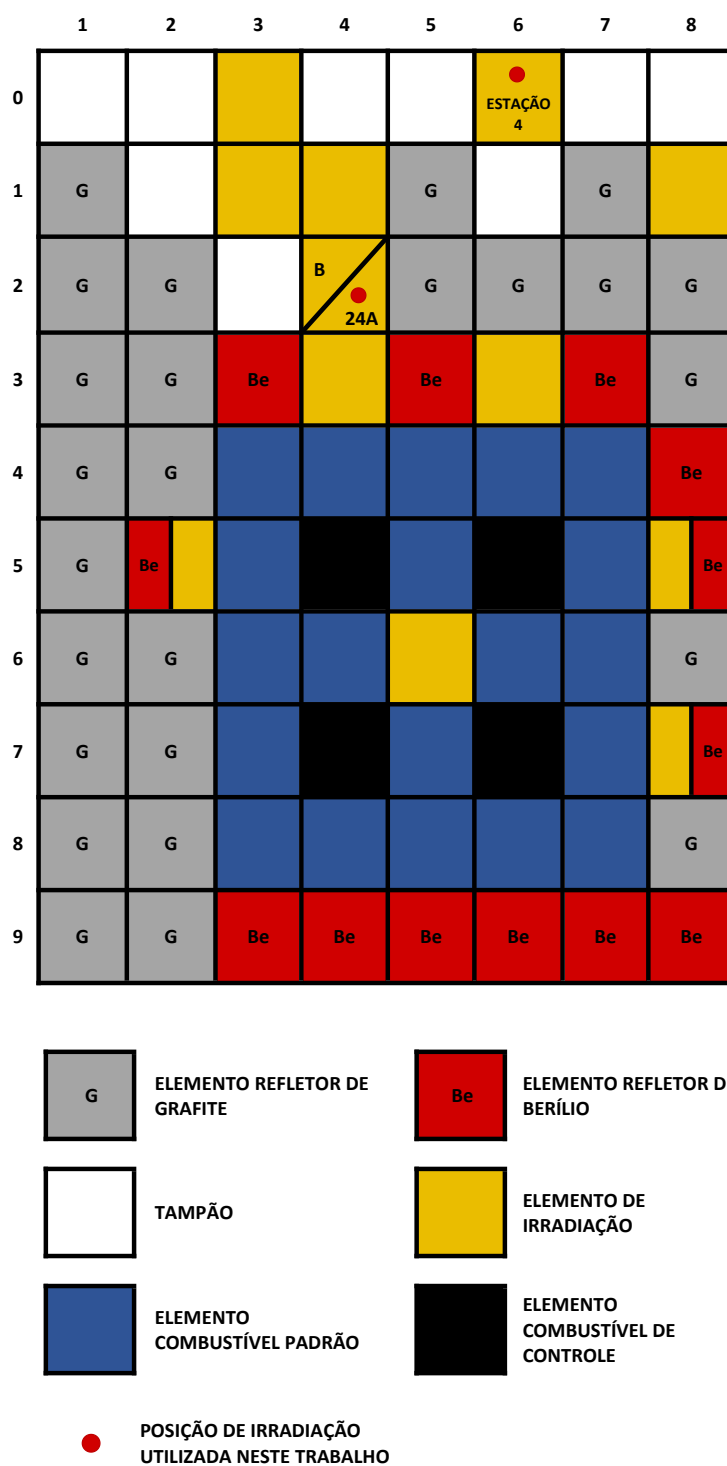


Fonte: Jornal da USP, 2017.^[30]

Ao total são 24 elementos combustíveis feitos de liga U-Al, sendo que 4 destes permitem a inserção de barras de controle, por isso são chamados de elementos combustíveis de controle. Os outros 20 elementos combustíveis são do tipo MTR (*Material Testing Reactor*) e são denominados elementos combustíveis padrão. Os 24 elementos combustíveis estão dispostos no formato 5 x 5, sendo que na posição central há um elemento de irradiação. Os elementos refletores possuem a mesma geometria que os elementos combustíveis e são formados por blocos de berílio ou grafite com revestimento de alumínio^[29].

O esquema simplificado da configuração do reator IEA-R1 está apresentada na figura 3.2 com a indicação das posições de irradiação utilizadas neste trabalho. Posição 24A e Estação 4.

Figura 3.2 – Esquema simplificado da configuração do reator IEA-R1. Configuração 262.



Fonte: Relatório interno CERPq, 2019. Adaptado pelo autor.

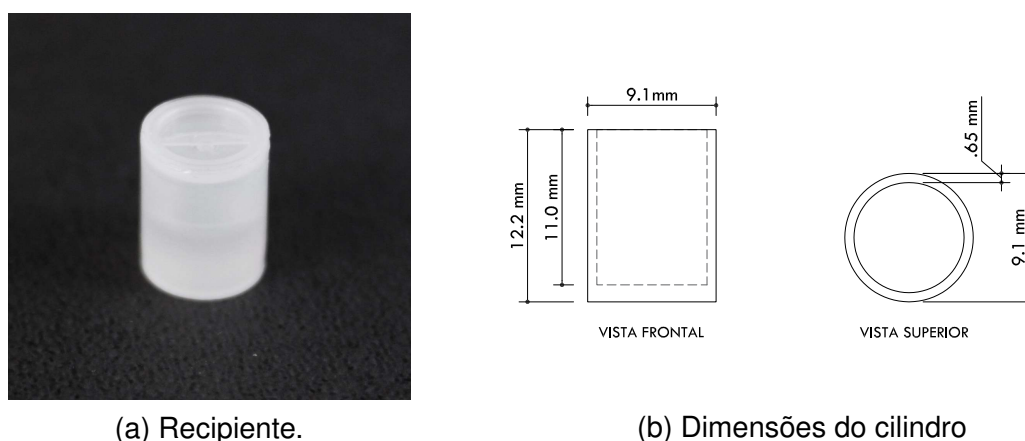
3.2 Medidas da intensidade de emissão gama absoluta

Nesta parte do trabalho foram realizadas as medidas da intensidade de emissão γ absoluta para a energias de 347 keV do ^{167}Ho em sistema de detecção absoluto a partir da contagem das desintegrações β^- .

3.2.1 Preparação das amostras para a irradiação

A preparação das amostras para medida de intensidade γ foram separadas em duas fases. A primeira fase foi feita antes da irradiação e a segunda, após. Na primeira fase foi pipetada, em um pequeno cilindro de polietileno (figura 3.3), aproximadamente 100 μL de uma solução de $^{166\text{m}}\text{Ho}$ diluída a partir da solução estoque fornecida pela *Electrotechnical Laboratory* (Japão)^[31] que contém carregador de ^{165}Ho na forma de HoCl_3 .

Figura 3.3 – Imagem e dimensões do cilindro de polietileno utilizado para a irradiação da medida de intensidade gama.



(a) Recipiente.

(b) Dimensões do cilindro

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

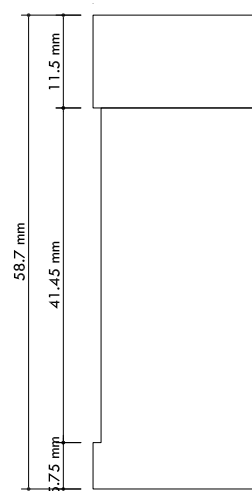
Em seguida, a amostra dentro do cilindro foi secada sob luz infravermelha e, após a secagem, o recipiente foi tampado e levado ao detector HPGe para se medir a taxa de desintegrações γ do $^{166\text{m}}\text{Ho}$, de forma a se verificar se havia sido depositada a quantidade necessária para a preparação de seis amostras após a irradiação¹. Após a verificação, o cilindro foi selado em filme de plástico e colocado dentro de um invólucro de polietileno em formato cilíndrico, chamado “coelho”. Na figura 3.4 está apresentado um destes “coelhos” de polietileno, assim como as suas dimensões.

¹ Irradiações prévias foram realizadas para se determinar a quantidade de amostra necessária para a preparação das seis amostras

Figura 3.4 – Imagem e dimensões do “coelho” de polietileno utilizado para a irradiação da medida de intensidade gama.



(a) Imagem do “Coelho” de polietileno.



(b) Dimensões do “coelho” de polietileno.

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Para que não houvesse movimentação da amostra dentro do invólucro durante todo o processo de irradiação, foi inserida espuma de poliuretano dentro deste mesmo invólucro para que a amostra permanecesse na mesma posição, em relação ao invólucro, durante a irradiação. A amostra preparada foi levada para ser irradiada.

3.2.2 Irradiação na Estação 4

Para esta parte do trabalho foi escolhida a Estação pneumática 4 para a realização da irradiação. A indicação desta posição está na imagem da figura 3.2. Na estação pneumática, as irradiações só podem ser realizadas por curto período de tempo de até 5 minutos, sendo que normalmente são feitas irradiações em tempos menores que este. Este cuidado deve ser tomado devido à fragilidade do coelho de polietileno que não suportaria a temperatura gerada por tempos de irradiação muito longos. Além disso, nas estações pneumáticas é possível ter acesso à amostra irradiada logo após a irradiação. Portanto, longos tempos de irradiação poderiam resultar em amostras que gerariam altas taxas de exposição, resultando em risco para a saúde dos alunos e pesquisadores.

Sendo esperado que a amostra irradiada seja composta por radionuclídeos de ^{166m}Ho , ^{166g}Ho e ^{167}Ho e o tempo de meia-vida do ^{167}Ho (radionuclídeo de interesse) é quase nove vezes menor que o radionuclídeo presente em maior quantidade (^{166g}Ho), quanto menor for o tempo entre a irradiação e as

medidas, maior será a razão entre o radionuclídeo de interesse e o radionuclídeo "contaminante". Deste modo, a utilização da Estação 4 se tornou mais vantajosa devido à possibilidade de manipulação da amostra imediatamente após a irradiação.

A amostra foi irradiada durante 40 segundos por um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ e, em seguida, levada para o laboratório de preparação de fontes radioativas do Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN).

3.2.3 Preparação das amostras para a medida em sistema absoluto

Após a irradiação, o pequeno cilindro de polietileno foi levado ao LMN, aberto e a amostra foi diluída em aproximadamente $135 \mu\text{L}$ de HCl 0,1 N. A solução foi pipetada, em proporções aproximadamente iguais, em 6 filmes finos de *collodion* previamente metalizados com Au, fixados em arandela de Al e colocados para secar sob luz infravermelha. Uma amostra pronta para as medições em sistema absoluto é apresentada na figura 3.5.

Figura 3.5 – Amostra de Ho em filme fino de *collodion* metalizado em Au, fixado em arandela de Al, sobre um suporte de polietileno.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

3.2.4 Sistema absoluto $4\pi\beta - \gamma$

As medidas foram feitas em sistema absoluto $4\pi\beta - \gamma$ do LMN. A imagem do arranjo utilizado está apresentada na figura 3.6 e é denominada *Sistema I*.

A parte central é constituída por uma blindagem de blocos de chumbo formando uma estrutura retangular e dentro há um contador proporcional em

Figura 3.6 – Imagens do *Sistema I* (a) montado e (b) parcialmente desmontado, formado por contador proporcional $4\pi\beta$ e os detectores de NaI(Tl) e HPGe.



(a) Montado.



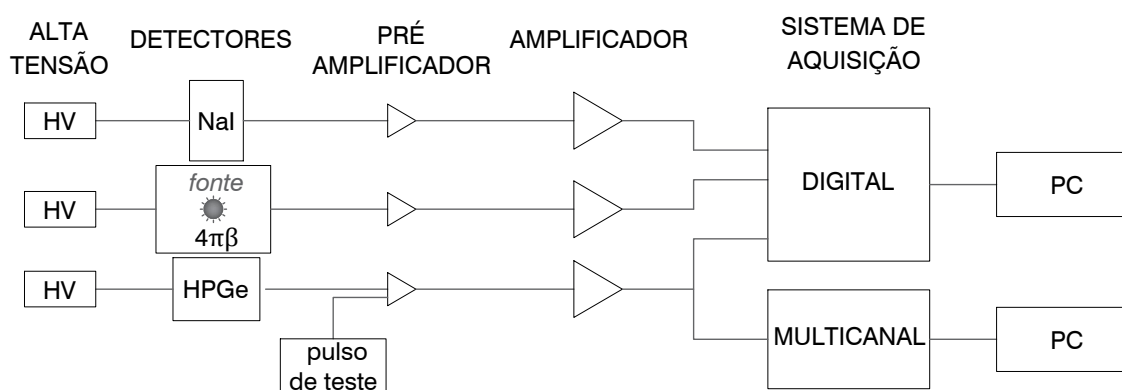
(b) Parcialmente desmontado.

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

geometria 4π , operado a gás fluente, para detecção de radiações carregadas (α , β^+ , β^- e elétrons), na imagem da figura 3.6a a porta de chumbo está aberta, então é possível visualizar parte da estrutura do contador proporcional. Na parte superior do sistema há um cristal cintilador de NaI(Tl) de formato cilíndrico envolvido por uma blindagem de chumbo e acoplado ao contador para detecção de radiação γ , na figura 3.6b há a imagem desta parte superior do *Sistema I* sem a blindagem. E ligado à parte inferior, também para medição de radiação γ , há um detector semiconductor de germânio hiperpuro (HPGe).

Todos os detectores que compõem o sistema estão conectados a um módulo digital em que todos os pulsos gerados são armazenados em um computador (PC) associados ao tempo em que foram coletados para posterior análise. O sistema envolvendo o detector HPGe também foi direcionado a um analisador multicanal e conectado a outro PC. O diagrama esquemático das conexões do *Sistema I* estão apresentados na figura 3.7.

Figura 3.7 – Diagrama de blocos do *Sistema I*, formado por contador proporcional $4\pi\beta$ e os detectores semicondutores de NaI(Tl) e HPGe.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

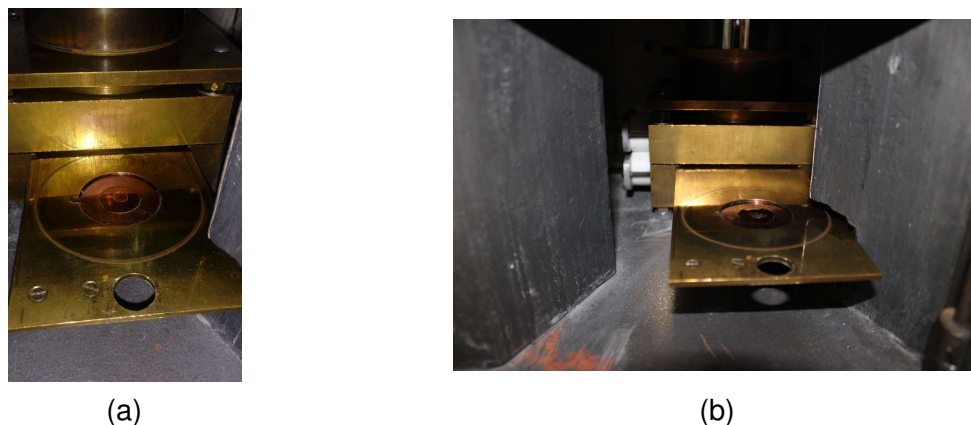
3.2.4.1 Contador proporcional $4\pi\beta$

O contador proporcional $4\pi\beta$ do LMN é um detector do tipo “pill box” que é composto por duas partes simétricas de latão em que juntas formam uma caixa. Por dentro desta “caixa” desliza uma placa do mesmo material usinado de forma a funcionar como uma gaveta para amostras em filme de *collodion* como a apresentada na figura 3.5, com isso é possível colocar a amostra dentro do detector sem a necessidade de abri-lo. Na figura 3.8 são mostradas duas imagens de umas dessas amostras dentro da gaveta a ser inserida no interior do detector. Há um delimitador na parte traseira, de onde desliza a gaveta, para que, ao inseri-la completamente, a amostra fique posicionada centrada dentro do detector. A vedação do sistema é assegurada por dois anéis de borrachas colocados em cada uma das partes que compõem a caixa de latão^[11].

O volume do interior do detector é de formato aproximadamente cilíndrico e possui as dimensões de aproximadamente 30 mm de diâmetro e 70 mm de comprimento. Por cada uma das partes, superior e inferior, que compõem o detector há um fio de aço inoxidável, com 50 μ m de diâmetro, esticado paralelamente ao eixo do cilindro e preso nas extremidades em material isolante, formando o ânodo em que foi aplicada a tensão de 2050 V que é a tensão normalmente utilizada para detecção de partículas β ^[11].

O detector é operado a gás fluente P10 constituído por 10% de metano (CH₄) e 90% de argônio (Ar) e mantido à pressão 1 atm dentro do detector. Este gás passa por um recipiente contendo sílica antes de entrar no detector para a retirada

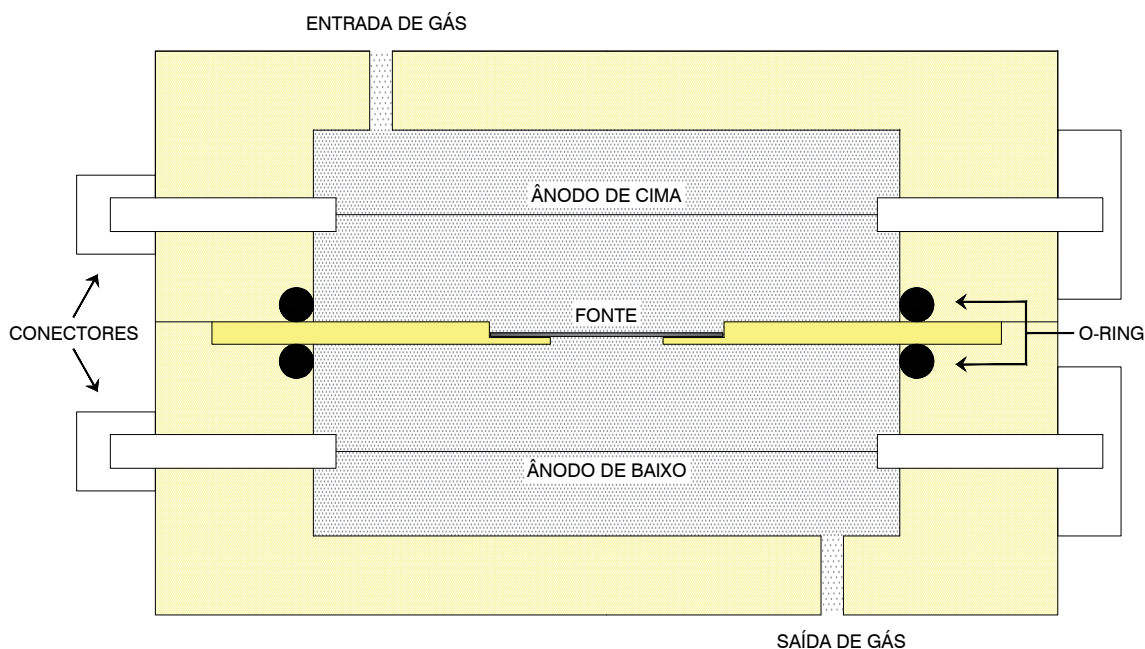
Figura 3.8 – Imagens do detector $4\pi\beta$ com uma amostra em filme de *collodion* na gaveta a ser inserida no interior do detector.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

de umidade. A figura 3.9 mostra um esquema do contador proporcional em corte transversal e vista frontal.

Figura 3.9 – Esquema do contador proporcional em corte transversal e vista frontal.



Fonte: Takeda, 2006.^[32] Adaptado pelo autor.

O funcionamento do detector se baseia na ionização do gás pela interação com radiação carregada, por isso a eficiência para a radiação γ é muito baixa (<1%), mas para radiação β pode chegar próxima de 100%. A diferença de potencial

aplicada no ânodo gera um campo elétrico que acelera os íons produzidos em direção aos seus respectivos eletrodos. Quando as partículas são aceleradas, novas ionizações são geradas devido a energia cinética adquirida no trajeto até o ânodo, provocando uma “avalanche” de ionizações, chamada de “avalanche de Townsend”, e aumentando a amplitude do pulso elétrico gerado^[33]. Como, nas interações, só ocorre a deposição de parte da energia no volume sensível, este detector se comporta como um contador de eventos e o tempo necessário para a sua recuperação de forma que seja possível a distinção entre dois eventos consecutivos é da ordem de 100 ns.

3.2.4.2 Cintilador NaI(Tl)

O cristal cintilador de iodeto de sódio dopado com tálio (NaI(Tl)) possui alta eficiência para a radiação γ devido ao alto valor do número atômico (Z) do iodo. As dimensões de 76 mm de diâmetro e 76 mm de comprimento do cristal utilizado lhe permitem uma resolução típica de aproximadamente 7% da energia de 661,7 keV do ^{137}Cs ^[34]. O cristal está acoplado a um tubo fotomultiplicador (PMT) e envolvido por um tubo de alumínio hermeticamente fechado, fazendo com que se reduzam os efeitos de deterioração do cristal, já que este é higroscópico.

Quando um fóton interage com as moléculas do cristal, os elétrons deste se excitam ocupando níveis de energia instáveis. Para retomar a estabilidade, o elétron excitado libera a energia em excesso em forma de fótons que estão dentro do espectro visível e retorna a uma configuração de estabilidade. Estes fótons são coletados pela PMT, que tem a função de multiplicar o número inicial de fotoelétrons produzidos por estes fótons e converter o sinal luminoso em pulsos elétricos. O pulso elétrico gerado é proporcional a luz produzida no cintilador e esta é proporcional a energia do fóton inicial absorvida pelo cristal^[21].

O conjunto formado pelo cristal e a PMT ficam acoplados à superfície superior da caixa de latão, que constitui a estrutura externa do contador proporcional (fig. 3.6b). Em razão da alta sensibilidade do cintilador, é necessária a utilização de uma blindagem de chumbo (5 cm de espessura) para reduzir a penetração da radiação de fundo no cintilador (fig. 3.6a).

A tensão de operação foi de 1100 V e as medidas neste detector foram utilizadas para algumas análises de eficiências dos picos de absorção total das energias de interesse, aplicando o método de coincidência.

3.2.4.3 Detector de HPGe do Sistema I

Encostado na parte inferior do contador proporcional $4\pi\beta$ há um detector de germânio hiperpuro (HPGe). Este é um cristal semiconductor sensível a radiação γ . Comparado ao detector de NaI(Tl), o HPGe possui eficiência inferior, porém tem melhor resolução em energia γ . Para o bom funcionamento deste detector, reduzindo a sua corrente de fuga e preservando a sua boa resolução, é necessário mantê-lo à baixa temperatura. Por este motivo, há um criostato onde é armazenado o nitrogênio líquido que se mantém em contato térmico com cristal, como observado na figura 3.6a.

A vantagem de se utilizar um sistema de medida absoluta com um detector de HPGe associado a ele é a possibilidade de se determinar a atividade de uma fonte e a área do pico de absorção total das energias de interesse, em medidas simultâneas.

3.2.5 Medidas em sistema absoluto e HPGe

Considerando os tempos de meia-vida dos radionuclídeos presentes nas amostras a serem medidas (Tab. 3.1), decidiu-se fazer as medidas em três etapas. A primeira etapa de medidas foi realizada logo após a preparação nos filmes finos em que estavam presentes os três radionuclídeos. A segunda etapa de medidas foi realizada após dois dias da data da irradiação, quando o ^{167}Ho já havia decaído, restando apenas o dois radionuclídeos do hólmio de massa 166. A terceira etapa de medidas foi realizada após duas semanas da data da irradiação, quando tanto o ^{167}Ho como o ^{166g}Ho já haviam decaído, restando apenas o ^{166m}Ho .

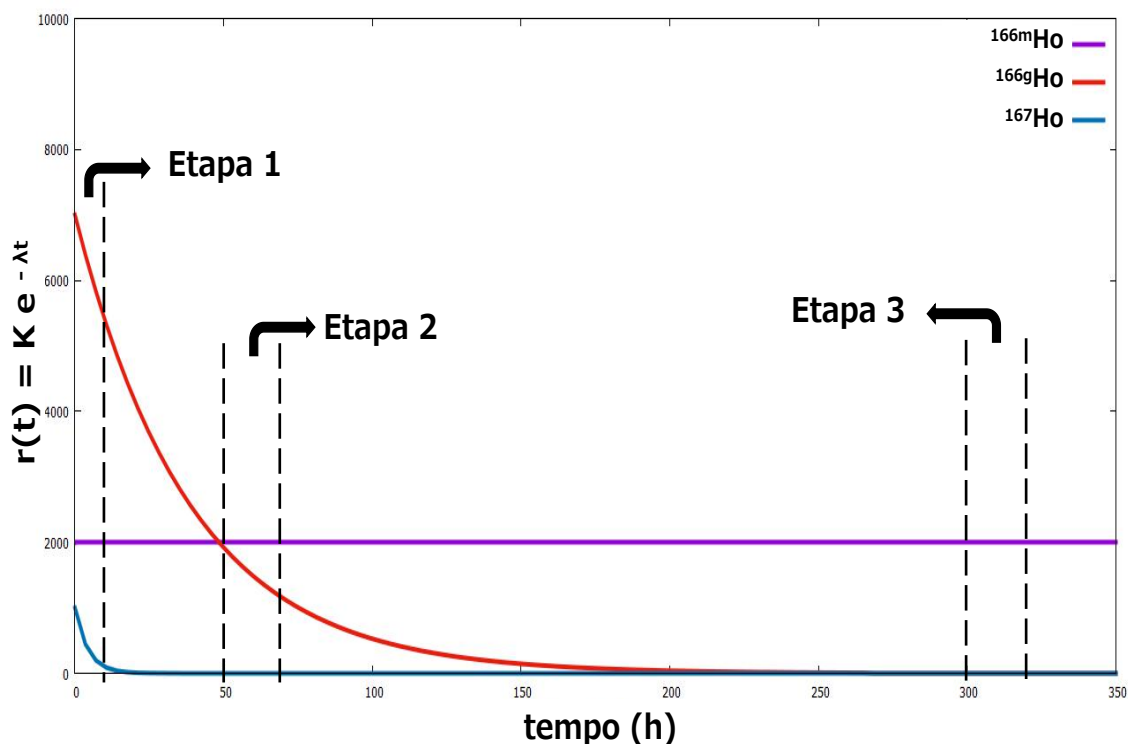
Tabela 3.1 – Meia-vida dos isótopos ^{167}Ho , ^{166g}Ho e ^{166m}Ho .

radionuclídeo	Meia-vida
^{167}Ho	$3,003 \pm 0,018 \text{ h}^{[7]}$
^{166g}Ho	$26,795 \pm 0,029 \text{ h}^{[15]}$
^{166m}Ho	$1133 \pm 8 \text{ a}^{[14]}$

No gráfico da figura 3.10 estão apresentados os decaimentos dos três radionuclídeos sobrepostos, no decorrer das três etapas.

Em todas as etapas foram feitas medidas simultâneas no contador proporcional, no detector de NaI(Tl) e no HPGe de cada uma das seis amostras. Como o ^{167}Ho decai de forma considerável durante as medidas da primeira etapa, as primeiras duas medidas nesta etapa foram realizadas durante 1.000 segundos, as duas seguintes em 2.000 segundos e as últimas duas em 3.000 segundos. Todas

Figura 3.10 – Gráfico representando a sobreposição dos decaimento do ^{166m}Ho , ^{166g}Ho e ^{167}Ho no decorrer das três etapas.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

as outras medidas das outras duas etapas foram realizadas durante 3.000 segundos cada ².

Todas as medidas dos três detectores envolvidos foram registradas utilizando o sistema digital, apenas as contagens detectadas pelo HPGe também foi registrada pelo analisador multicanal com o software de aquisição *MAESTRO* para *Windows* modelo A65-B35, versão 6.01.

A calibração em eficiência do detector de HPGe que faz parte do *Sistema I* foi feita utilizando-se uma fonte padrão secundário de ^{152}Eu , rastreada por um padrão primário calibrado no sistema de coincidência $4\pi\beta - \gamma$.

3.3 Medida da seção de choque térmica e integral de ressonância

Nesta parte do trabalho foi feita a medida da seção de choque para nêutrons com velocidade de 2200 m/s e a integral de ressonância pelo método de razão de cádmio. Neste método os alvos são preparados em duplicata em que

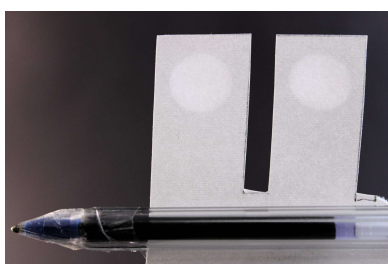
² A partir da taxa de contagem de cada amostra obtida por uma medida curta (≈ 100 s) é que foram escolhidos os tempos de medida de forma a se obter a estatística do contagem necessária para as seis medidas

apenas um deles é irradiado com cobertura de cádmio.

3.3.1 Preparação das amostras

As amostras de ^{166m}Ho utilizadas para a medida de seção de choque e integral de ressonância foram preparadas a partir da diluição de uma solução estoque de ^{166m}Ho , contendo carregador de ^{165}Ho na forma de HoCl_3 , proveniente do *Electrotechnical Laboratory* (Japão)^[31]. Para esta parte do trabalho, foi pipetada aproximadamente $10\ \mu\text{L}$ da solução em dois pedaços de papel-filtro de $20\ \text{mm} \times 25\ \text{mm}$ (Fig. 3.11a).

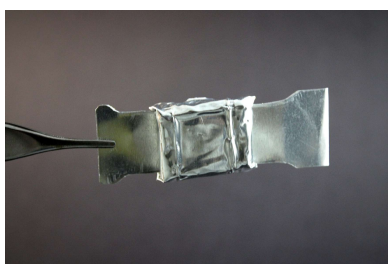
Figura 3.11 – Estágios da preparação das amostras a serem irradiadas desde a deposição da amostra em papel-filtro até colocar o par de amostras nos “coelhos” de alumínio.



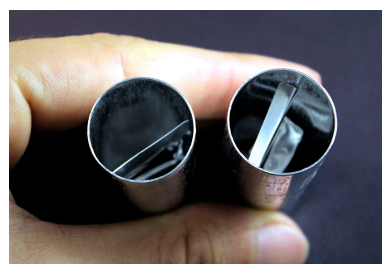
(a) Secagem da amostra pipetada em papel-filtro.



(b) Amostra dobrada e selada dentro da cápsula de Cd.



(c) Amostra fixada em haste de alumínio.



(d) Par de amostras dentro do “coelho” de alumínio prontas para serem encaminhadas para o setor de irradiação.

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Após a secagem, os papéis foram dobrados separadamente de forma a se aproximarem de uma fonte puntiforme e selados em um filme de plástico. Junto com as fontes, foi colocado um fio de liga Al-Au (Material de Referência Certificado IRMM-530RC, contendo 0.1% de Au) para a monitoração do fluxo de nêutrons. O conjunto de amostras de hólmio e ouro foi colocado dentro de uma cápsula de cádmio (Fig. 3.11b) e fixado com uma folha de alumínio, por meio de uma haste (Fig.

3.11c), também de alumínio, para que ficasse posicionado no centro do invólucro de alumínio (“coelho”). Na figura 3.11d está apresentado o par de amostras (com Cd e sem Cd) prontas para serem levadas ao setor de irradiação. Esses “coelhos” foram devidamente selados pelo setor irradiação antes da irradiação.

Um outro conjunto de hólmio e ouro foi colocado diretamente na haste, sem a cobertura de cádmio, no interior de outro “coelho”.

3.3.2 Irradiação próxima ao núcleo do reator

Diferentemente das irradiações na Estação pneumática, as irradiações próximas ao núcleo do reator podem ser realizadas por um período muito mais prolongado, pois o “coelho” utilizado nesta posição é feito de alumínio e, portanto, possui maior resistência ao calor gerado por um longo período de irradiação. Em contrapartida, o alumínio, assim como o cádmio, se torna muito ativo logo após a irradiação, o que inviabiliza a manipulação da amostra nesse momento, sendo possível o seu manuseio a partir do dia seguinte após a irradiação.

A medida da atividade do produto da reação é um dos parâmetros necessários para a medida de seção de choque deste trabalho. Neste caso, a presença dos radionuclídeos interferentes (^{166m}Ho e ^{166g}Ho) é menos significativa em medidas realizadas no detector semicondutor HPGe, sendo mais relevante ter maior contagem no pico de absorção total da energia de 347 keV do ^{167}Ho .

Os “coelhos” foram irradiados em sequência, por 30 minutos cada um, próximos ao núcleo do reator IEA-R1 na posição 24A, prateleira 5, onde o fluxo de nêutrons térmicos é da ordem de $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Esta posição de irradiação foi indicada na figura 3.2.

Como a presença do Cd no interior do reator provoca uma alteração significativa no fluxo de nêutrons próximo à região em que foi inserido e as irradiações seriam executadas sequencialmente, decidiu-se iniciar as irradiações pelo conjunto de amostras sem Cd para eliminar qualquer possibilidade de dúvida sobre a influência do Cd na amostra sem Cd.

3.3.3 Detector de HPGe

As propriedades gerais do detector de HPGe utilizado nas medidas de seção de choque e integral de ressonância são as mesmas já mencionadas para o detector associado ao *Sistema I*. Nesta seção serão apresentadas algumas particularidades do arranjo utilizado nesta parte do experimento.

Estas medidas foram realizadas em detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe) *CANBERRA*, modelo GR1520. Este detector possui geometria coaxial e eficiência relativa típica de 15%, com resolução de ~ 2 keV na energia de 1332 keV do ^{60}Co ^[35].

Assim como todos os detectores de HPGe, é necessário o contato térmico de aproximadamente 77K com o criostato para o seu bom funcionamento, além da blindagem adequada para a redução da detecção da radiação de fundo. Na figura 3.12 temos (a) a vista frontal do arranjo utilizado nas medidas da radiação γ e (b) a vista da parte interna, onde são colocadas as amostras.

Figura 3.12 – Imagens do detector de HPGe *CANBERRA*, modelo GR1520, utilizado nas medidas de seção de choque e integral de ressonância.



(a) Vista frontal.

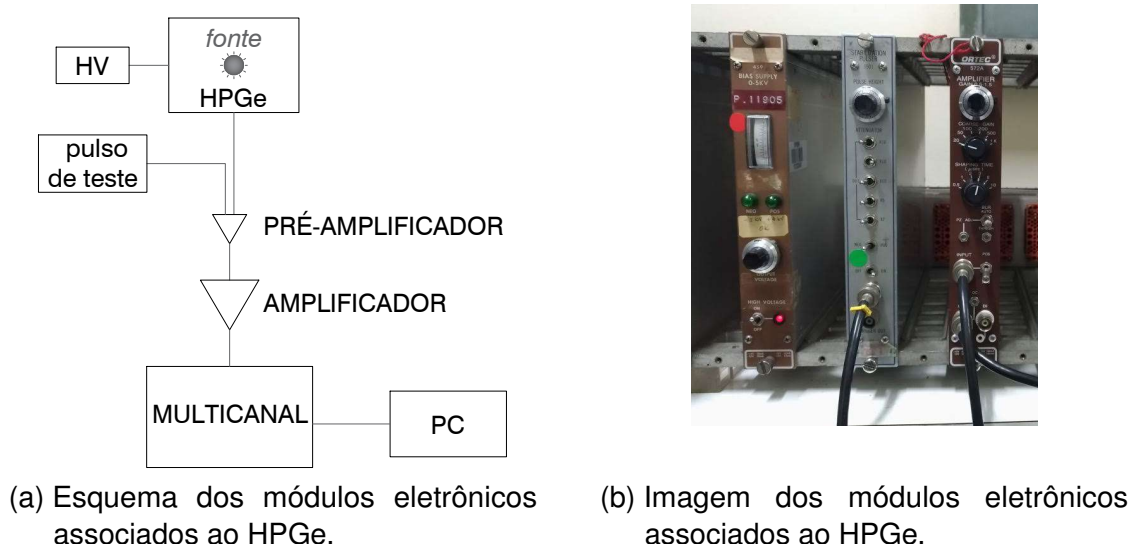


(b) Vista interna à blindagem de chumbo.

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

O arranjo dos módulos eletrônicos utilizados, assim como a suas imagens, estão apresentados na figura 3.13. Foi ajustada a tensão de saída de 4 kV no módulo de alta tensão (HV) *ORTEC*, modelo 459. Foi também utilizado um pulso de teste da *CANBERRA*, modelo 1501, conectado ao pré-amplificador e a saída do pré-amplificador foi inserida no amplificador de espectroscopia *ORTEC*, modelo 572A. A saída do amplificador foi direcionada ao analisador multicanal *ORTEC*, modelo ACE de 8192 canais e os dados foram registrados no software de aquisição *MAESTRO* para *Windows* modelo A65-B35, versão 6.01.

Figura 3.13 – Imagem e esquema dos módulos eletrônicos associados ao detector de HPGe utilizado na medida de seção de choque e integral de ressonância.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

3.3.4 Medidas no detector de HPGe

Após a espera de cerca de 20 horas do final da irradiação, tempo necessário para o decaimento do alumínio, as amostras foram retiradas dos "coelhos" e medidas no detector de HPGe.

Quanto menor a distância entre o detector e a amostra, maior é a eficiência de contagem e portanto é possível obter melhor estatística de contagem com menor tempo de medida. Porém, à medida que a distância diminui, efeitos indesejados aumentam, como o aumento do tempo morto do detector, o aumento do efeito de soma em cascata e do empilhamento dos picos de absorção total. Estes efeitos devem ser reduzidos, ou eliminados, com a melhoria do arranjo experimental e posteriormente corrigidos na análise dos dados, o que não foi possível de se resolver na coleta destes dados.

Devido à baixa atividade das amostras de ^{167}Ho após a irradiação, as medidas das taxas de desintegração foram realizadas com a distância entre a amostra e o detector de 10 cm (fig. 3.14).

Em contrapartida, a correção para tempo morto se elevou significativamente devido à grande incidência de β^- no HPGe. Para redução desse efeito, foi fixado um filtro de alumínio ao suporte da amostra para barrar a radiação β , como mostrado na figura 3.15. Todas as medidas foram realizadas com

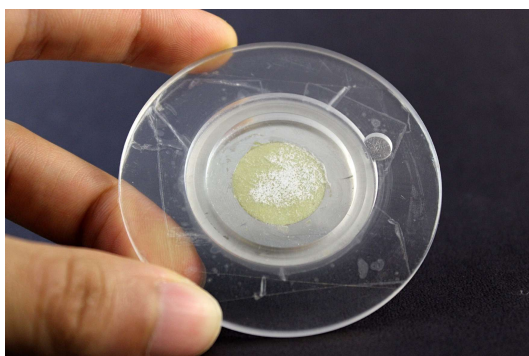
Figura 3.14 – Suporte utilizado nas medidas no HPGe para delimitar a distância entre a fonte e o detector.



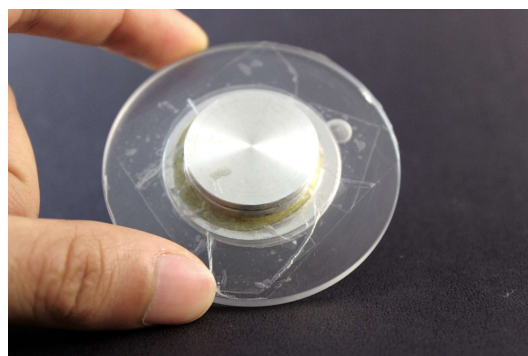
Fonte: Acervo pessoal, 2020.

as amostras sobre esse suporte, assim como a curva de calibração em eficiência do detector de germânio.

Figura 3.15 – Filtro de alumínio fixado no suporte das amostras.



(a) Vista superior



(b) Vista inferior

Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Foram realizadas as medidas das áreas dos picos de absorção total das energias de interesse das amostras de ^{166m}Ho , ^{167}Ho , ^{198}Au e de algumas fontes padrões da AIEA para calibração do detector em energia e eficiência.

Devido à baixa atividade da fonte de ^{167}Ho e seu rápido decaimento ($T_{1/2} = 3\text{h}$), foi realizada a medida das contagens da amostra sem Cd à distância de 10 cm durante 1h, em seguida foi feita uma medida de 6,5h da amostra com Cd à distância de 2 cm (apenas com o anel e o filtro de alumínio). E por último foram realizadas 6 medidas da amostra sem Cd durante o seu decaimento à 2 cm de distância. Para o ^{198}Au foram realizadas 3 medidas de cada amostra (com e sem Cd) à distância de 10 cm.

A calibração em energia e eficiência do detector foi feita com fontes padrão de ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba e ^{152}Eu . Consideradas como puntiformes, estas fontes foram confeccionadas em disco de alumínio de 25,0 mm de diâmetro externo, 1,7 mm de espessura e rastreadas a padrões calibrados no sistema de coincidências $4\pi\beta - \gamma$. As energias utilizadas para a calibração variaram de 121 keV a 1408 keV. Todas as medidas das fontes padrão foram realizadas à distância de 10 cm do detector.

4 ANÁLISE E TRATAMENTO DE DADOS

4.1 Medidas da intensidade de emissão gama absoluta

A medida da intensidade de emissão γ absoluta do ^{167}Ho é uma medida de alta complexidade e que requer muitos cuidados. Nessa seção estão apresentadas as análises, o tratamento dos dados e as correções aplicadas. Foram feitas todas as análises com o objetivo de determinar a atividade no sistema absoluto por meio das contagens β no detector proporcional e da eficiência e das contagens γ no espectrômetro de HPGe. Uma breve descrição dos programas utilizados nessa seção estão apresentada no apêndice B.

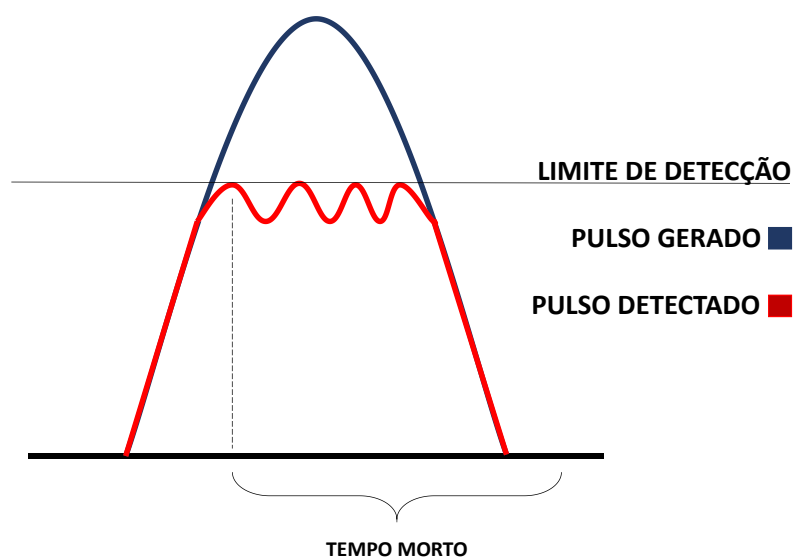
4.1.1 Correção de tempo morto

As contagens β , do detector proporcional 4π , e γ , dos detectores de HPGe e NaI, foram registradas pelo sistema digital e analisadas pelo programa *SCTAC* versão *68V*^[36].

A vantagem de se usar o sistema digital é que todos os pulsos gerados são coletados, independentemente da taxa em que ocorrem. Com isso, pode-se dizer que o módulo do sistema digital tem tempo morto aproximadamente igual a zero ($\tau \approx 0$). Por outro lado, como descrito na seção 3.2.4.1, o contador proporcional $4\pi\beta$ pode gerar pulsos de amplitudes variadas, dependendo da porcentagem de energia que é transferida nas ionizações. Quando um pulso gerado atinge uma amplitude maior que o limite de saturação do amplificador, esse pulso é detectado como um pulso modificado apresentando pequenos pulsos na região de amplitude máxima, como mostra o desenho esquemático da figura 4.1. Como o sistema digital coleta todos os pulsos, a cada ponto de máximo dos pulsos gerados na região de saturação, o sistema de armazenamento de dados registra como uma nova contagem. Por esse motivo, um pulso como o exemplo desta figura resultaria em 4 contagens em lugar de apenas uma.

Por esse motivo, foi aplicado no programa *SCTAC68V*^[36] um tempo morto $\tau = 3 \mu\text{s}$, em que o *software* ao processar um pulso que foi registrado, ignora todos os outros pulsos subsequentes, registrados durante este intervalo de tempo. O valor de tempo morto escolhido deve ser maior que a duração de qualquer pulso saturado. Com os dados das contagens extraídos do programa, foi aplicada o fator de correção para o tempo morto (f_τ) correspondente, multiplicando este fator pela

Figura 4.1 – Desenho esquemático de um pulso saturado gerado e o pulso detectado.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

taxa de contagens β .

O fator de correção para tempo morto foi calculado da seguinte forma:

$$f_{\tau} = \frac{1}{1 - r_{\beta} \tau} \quad (4.1)$$

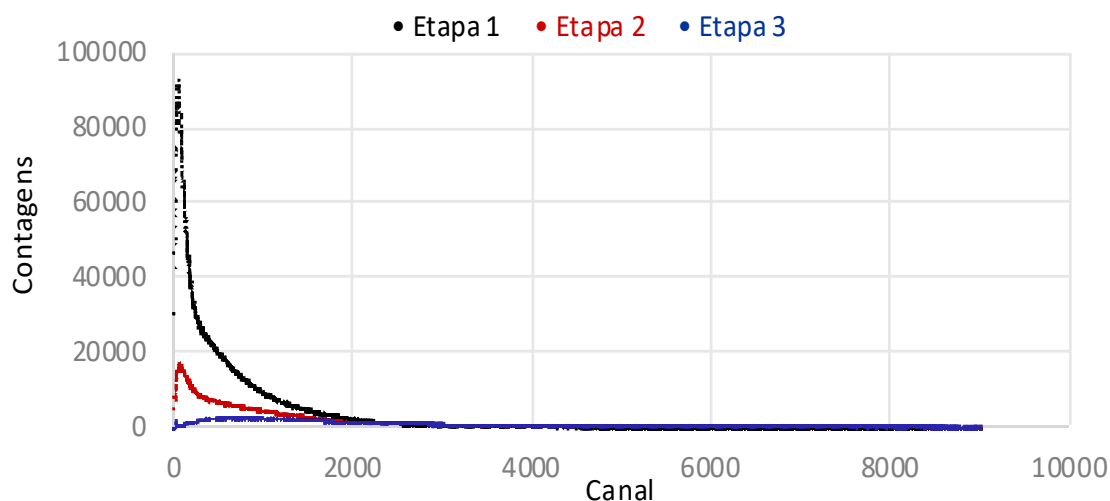
em que r_{β} é taxa de contagens β obtida pelo programa SCTAC68V^[36].

4.1.2 Correção da perda das contagens β de baixa energia

Na figura 4.2 é mostrado, como exemplo, o gráfico das contagens por canal registradas nas três etapas (referente à figura 3.10) de uma das fontes.

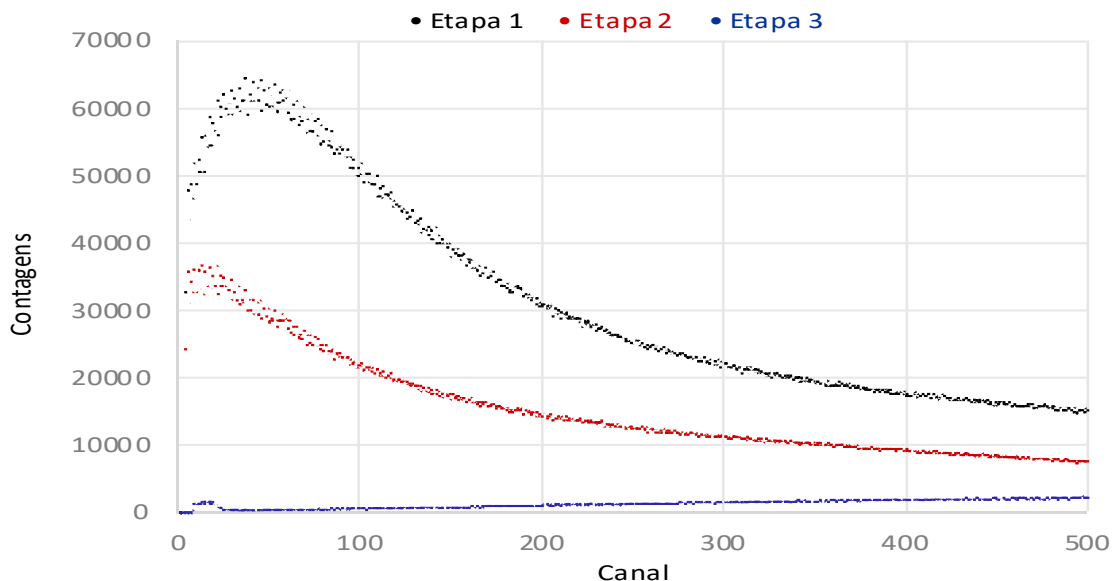
Em um espectro deste tipo é esperado que haja partículas β com energias que variam de zero até uma certa energia máxima, que é diferente para cada nuclídeo, formando um espectro contínuo. No gráfico apresentado na figura 4.3 mostra em detalhe a região para β de baixas energias. Como pode ser observado neste gráfico, principalmente na etapa 2 (referente à figura 3.10), as contagens β esperadas para baixas energias não estão sendo detectadas.

Figura 4.2 – Contagem por canal das desintegrações β^- detectadas pelo contador proporcional 4π para a fonte número 4.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Figura 4.3 – Contagem por canal das desintegrações β^- da fonte número 1, detectadas pelo contador proporcional 4π que evidencia a perda das contagens β de baixas energias.



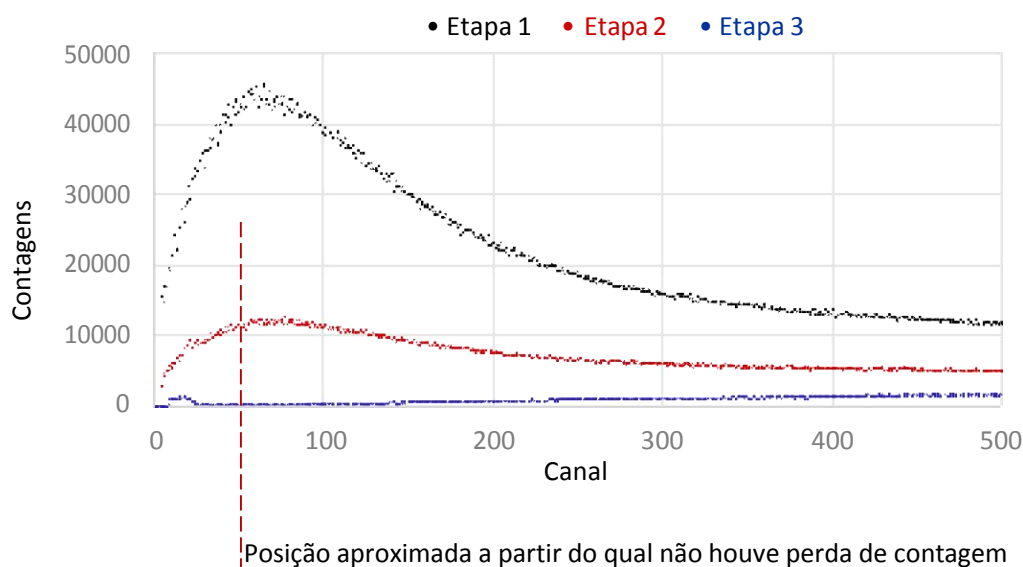
Fonte: Acervo pessoal, 2020.

A perda das contagens devidas as partículas β de baixa energia do espectro podem ser o resultado de diversos fatores, como a espessura e o material em que foi depositada a amostra, a uniformidade da metalização do ouro, a própria uniformidade da amostra depositada, o preenchimento do gás no volume completo do detector e as configurações de tensão e amplificação de sinal aplicadas ao

contador proporcional.

Analisando as medidas que foram realizadas no decorrer da etapa 2, notou-se que houve uma melhora do ganho das medidas realizadas no final do dia, comparadas com as medidas realizadas no início do dia, resultando em um espectro sem a perda dos β de baixa energia, como pode ser observado no gráfico 4.4.

Figura 4.4 – Contagem por canal das desintegrações β^- detectadas pelo contador proporcional 4π sem a perda dos β de baixas energias.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Com isso, conclui-se que nas primeiras medidas da etapa 2 a mistura de gás P10 não havia preenchido completamente o volume do detector 4π , o que reduziu o seu ganho. A medida que o gás fluía pelo detector o preenchimento se tornava mais completo com a substituição do ar atmosférico pela mistura de argônio e metano. O aumento da mistura do gás dentro do detector resulta em aumento do ganho, já que os β de menor energia também conseguem ser detectados e, por isso, as medidas realizadas no final do dia apresentam o espectro completo.

É importante destacar que devido a necessidade das amostras serem depositadas em filmes finos para que fosse possível a detecção em sistema $4\pi\beta$, estas amostras são frágeis e por isso esses filmes podem se romper com facilidade, inclusive com o próprio fluxo de gás dentro do detector. O rompimento da amostra dentro do detector ocasiona certos problemas. Além da perda da amostra, haverá a necessidade de desmontar todo o sistema para a descontaminação e com isso o

risco de inviabilizar todo o experimento em decorrência do tempo perdido nesse processo.

Considerando os riscos envolvidos, optou-se por manter o controle de pressão do gás com baixo fluxo durante todo o experimento e para as medidas da terceira etapa o gás foi ligado na noite anterior. Com o preenchimento completo do gás durante a madrugada, os espectros das medidas da etapa 3 não apresentaram discriminação significativa para baixas amplitudes de pulso, como pode ser visto nos gráficos 4.3 e 4.4.

A correção das perdas de contagem de baixas energias do espectro β observadas na etapa 2, foram realizadas pela razão entre áreas, conforme descrito a seguir. Utilizando um espectro das últimas medidas desta etapa, foi feita a razão entre a área total e a área a partir da posição no espectro em que foi considerado que ocorreu o corte dos espectros das fontes das primeiras medidas da etapa 2 (figura 4.4). A partir da obtenção da razão entre o espectro total e o espectro a partir desta posição, foi aplicada a correção nos outros espectros.

No dia anterior à etapa 1, chamada de “etapa 0”, foi realizada a medida para as contagens da radiação de fundo (BG). Após a aplicação da correção para tempo morto obteve-se a taxa de $62,02 \pm 0,14$ contagens/s. Este valor foi subtraído dos valores das medidas das etapas seguintes.

Na tabela 4.1 estão apresentados os valores das taxas β de cada fonte, em cada etapa, já aplicadas as correções para a discriminação do espectro β e para o tempo morto, além de já subtraído as contagens da radiação de fundo. A etapa 1 foi realizada no dia da irradiação. Foram feitas duas medidas para cada fonte na etapa 2, sendo a primeira realizada um dia após a irradiação e segunda feita dois dias após a mesma. Essas etapas foram nomeadas de 2.1 e 2.2, respectivamente. A etapa 3 foi realizada 13 dias após a irradiação. As fontes estão apresentadas nesta tabela na sequência em que foram medidas.

Tabela 4.1 – Resultado das taxas de desintegrações β para as seis fontes nas diferentes etapas. A última coluna corresponde à incerteza estatística na taxa de contagem.

Etapa	Nuclídeos	Nº da fonte	Tempo de medida [s]	Taxa β [s ⁻¹]	Incerteza [%]	
1	^{166m} Ho	3	1000	11844	0,23	
		4	1000	11303	0,23	
		^{166g} Ho	2	2000	10396	0,23
		¹⁶⁷ Ho	6	2000	10150	0,23
		5	3000	7353	0,23	
		1	3000	9515	0,23	
2.1	^{166m} Ho	1	3000	6332	0,23	
		2	3000	6125	0,23	
		3	3000	5955	0,23	
		^{166g} Ho	4	3000	5842	0,23
		5	3000	4363	0,23	
		6	3000	5760	0,23	
2.2	^{166m} Ho	1	3000	4341	0,23	
		2	3000	4227	0,23	
		3	3000	4101	0,23	
		^{166g} Ho	4	3000	4094	0,23
		5	3000	3045	0,23	
		6	3000	4060	0,23	
3	^{166m} Ho	1	3000	1999	0,23	
		2	3000	1993	0,23	
		3	3000	1776	0,23	
		4	3000	1975	0,23	
		5	3000	1483	0,24	
		6	3000	1940	0,23	

4.1.3 Determinação das taxas de desintegrações β do ^{166m,166g,167}Ho presentes nas amostras

Como o ^{166m}Ho tem o tempo de meia-vida muito longo (~ 1133 anos) comparado com o tempo decorrido entre a irradiação e o dia da medida deste nuclídeo (etapa 3), pode-se considerar que a quantidade de desintegrações β em função do tempo permaneceu constante em todas as etapas. Portanto, subtraindo as taxas obtidas na terceira etapa das anteriores é possível retirar a contribuição do ^{166m}Ho das outras etapas.

O ^{166g}Ho com meia-vida de 26,795 (29) horas^[15] não pode ser considerado constante entre as medidas da primeira e segunda etapa. Portanto, é necessário fazer a correção para o decaimento deste nuclídeo antes de subtrair da taxa obtida na etapa 1.

De acordo com o modelo apresentado no gráfico 3.10 segundo a lei do

decaimento para os núclídeos de hólmio envolvidos, sabendo os tempos de início e fim de cada etapa, as contagens totais de cada etapa e considerando que as meia-vidas são bem conhecidas, é possível determinar-se a taxa instantânea do ^{166g}Ho e retroagi-la para um instante específico.

Os cálculos foram feitos a partir da integral das contagens na etapa 2, que é dado por:

$$N_{\beta} = \int_{t_i}^{t_f} r(t) dt \quad (4.2)$$

em que N_{β} é o total de desintegrações β para determinado núclídeo dentro de um intervalo de tempo (t_i e t_f) e $r(t)$ é a taxa em função do tempo de acordo com a lei de decaimento:

$$r(t) = r_0 e^{-\lambda t} \quad (4.3)$$

sendo r_0 é a taxa instantânea para $t = 0$.

Substituindo a equação 4.3 na 4.2 e resolvendo a integral para r_0 , temos:

$$r_0 = \frac{N_{\beta} \lambda}{e^{-\lambda t_i} - e^{-\lambda t_f}} \quad (4.4)$$

Ao subtrair as contagens referentes à terceira etapa (^{166m}Ho) da etapa 2, foram aplicadas as correções para o decaimento durante o tempo de medida para o ^{166g}Ho nas medidas dos dois dias desta etapa e determinadas as taxas instantâneas (r_0) de cada fonte no início das medidas da etapa 1, com a equação 4.4. A partir do conhecimento do valor de r_0 para cada amostra e conhecendo os tempos de medidas da etapa 1, foram determinadas as contagens β totais do ^{166g}Ho presentes na primeira etapa com a equação 4.2.

Na tabela 4.2 estão apresentados os valores das taxas obtidas para o ^{166g}Ho na etapa 1 e os valores para o ^{167}Ho correspondentes, assim como as suas respectivas incertezas.

Tabela 4.2 – Resultado das taxas β do ^{166g}Ho e do ^{167}Ho para as seis fontes correspondentes as 12 medidas da etapa 2. As incertezas correspondem à flutuação estatística nas taxas de contagens.

Etapa	Nº da fonte	Taxa do ^{166g}Ho [s ⁻¹]	Incerteza [%]	Taxa do ^{167}Ho [s ⁻¹]	Incerteza [%]
2.1	1	6891	0,4	625	5,3
	2	4783	0,5	1229	2,9
	3	2605	1,1	2253	1,8
	4	2459	1,1	1952	2,1
	5	5214	0,4	656	4,0
	6	4817	0,6	985	3,7
2.2	1	6846	0,5	670	6,0
	2	4754	0,8	1271	3,4
	3	2662	1,4	2082	2,3
	4	2464	1,5	1935	2,5
	5	5191	0,5	679	4,7
	6	4900	0,8	860	5,2

4.1.4 Influência dos “contaminantes” nas amostras

Antes de utilizar as contagens das desintegrações β apresentadas na tabela 4.2, para determinar a atividade da amostra de ^{167}Ho é preciso fazer a verificação cuidadosa se há a presença de “contaminantes” na amostra que poderiam contribuir com partículas β nas contagens obtidas.

Partindo da descrição da composição da amostra^[31], sabe-se que há a presença de HoCl_3 . Esta substância possui ponto de fusão em 718 °C^[37] e ponto de ebulição em 1500 °C^[37], portanto não passou por processo de evaporação durante o processo de secagem da amostra. O cloro é composto por ^{35}Cl e ^{37}Cl , sendo o primeiro presente em maior abundância ($\sim 75,7\%$). Ambos, em contato com nêutrons, têm maior probabilidade de produção de ^{36}Cl e ^{38}Cl , respectivamente, por reação de captura (n, γ). O ^{36}Cl é β puro e poderia ser um interferente importante, porém sua meia-vida é da ordem de $\sim 10^5$ anos e, portanto, pode ser considerado infinita comparado com os 13 dias da realização das medidas. Neste caso a quantidade de ^{36}Cl também permaneceu constante durante as 3 etapas e está presente juntamente com o ^{166m}Ho na etapa 3. Então quando subtraída as contagens obtidas na terceira etapa das etapas anteriores, também se está retirando a contribuição das partículas β provenientes do ^{36}Cl .

O ^{38}Cl tem meia-vida de ~ 37 minutos. Para este nuclídeo é necessário se fazer um estudo da sua presença após a irradiação e com isso determinar a contribuição das partículas β de seu decaimento nas contagens obtidas na primeira etapa, já que a quantidade de Cl na amostra é alta.

Para determinar a quantidade de ^{38}Cl produzido na irradiação foram levadas em consideração as seguintes informações. Todo o ^{166g}Ho presente na amostra é proveniente da captura radiativa do ^{165}Ho ; então a partir da equação 2.22 é possível estimar a quantidade de ^{165}Ho presente inicialmente na amostra.

Segundo as informações^[31] de que o carregador presente na amostra é composto por HoCl_3 , para cada átomo de ^{165}Ho há 3 átomos de Cl, sendo que 24,3% deles é ^{37}Cl .

A partir do conhecimento da quantidade de ^{37}Cl , da sua seção de choque ($\sigma_0 = 0,4 \text{ b}$) e o fluxo de nêutrons na Estação 4 ($\sim 10^{12} \text{ nêutrons cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) é possível estimar a quantidade de ^{38}Cl formado a partir da equação 2.22 e conseqüentemente a quantidade partículas β que contribuiriam para o valor encontrado na etapa 1 para a aplicação da sua devida correção, que foi de 0,3% a 8% dependendo do horário em que foi realizada a medida nesta etapa.

A solução utilizada para a preparação das amostras também foi testada para detecção de impurezas no laboratório de origem^[31]. Com isso, foi detectado ^{152}Eu e ^{154}Eu na proporção 0,2 e 0,6% de ^{166m}Ho , respectivamente. Os tempos de meia-vida para os nuclídeos de Eu que estariam presentes na amostras, segundo essa informação, após a irradiação com a captura radiativa estão presentes na tabela 4.3.

Tabela 4.3 – Meia-vida dos isótopos de Eu que estariam presentes na amostra após a irradiação. O número entre parênteses representa a incerteza nos últimos dígitos.

Radionuclídeo	Meia-vida [a]
^{152}Eu	13,522 (16) ^[38]
^{153}Eu	Estável
^{154}Eu	8,061 (4) ^[39]
^{155}Eu	4,753 (14) ^[40]

De acordo com a tabela 4.3, todas as meias-vidas dos nuclídeos radioativos de Eu são longas o suficiente, comparadas com o tempo de entre as etapas (13 dias), para que todas as partículas β detectadas estivessem presentes na terceira etapa e fossem retiradas junto com a mesma. Além disso, não foram observados os picos de absorção total característicos do Eu no detector de HPGe, provavelmente pela baixa quantidade citada dessas impurezas.

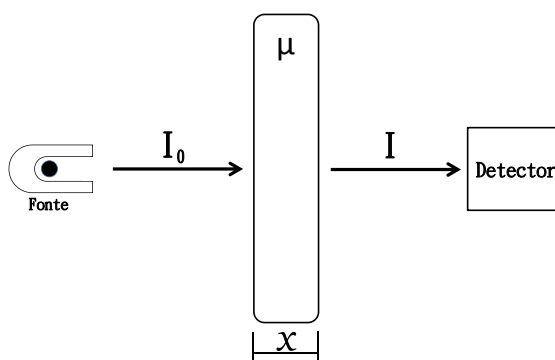
4.1.5 Determinação das eficiências β

Como as medidas dos β emissores no contador proporcional $4\pi\beta$ foi realizada de forma simultânea para cada um dos ramos β dos núclídeos de Ho envolvidos, é preciso fazer uma análise criteriosa das eficiências β dos casos em que não foi possível se determinar pelo método de coincidências. Para isso, foi realizada uma análise da atenuação β na fonte como descrito detalhadamente a seguir.

4.1.5.1 Atenuação β na fonte

Quando um feixe de partículas β (I_0) incide em um determinado material, parte das partículas β são absorvidas pelo material, resultando em uma atenuação do feixe de partículas incidentes (Fig. 4.5).

Figura 4.5 – Esquema ilustrativo da atenuação de partículas β incidindo em um absorvedor (I_0) de espessura x e coeficiente de absorção μ .



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Para a maioria dos espectros β , a curva tem um comportamento próximo à função exponencial e o coeficiente de absorção do material (μ) pode ser determinado da seguinte forma^[33]:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad (4.5)$$

em que:

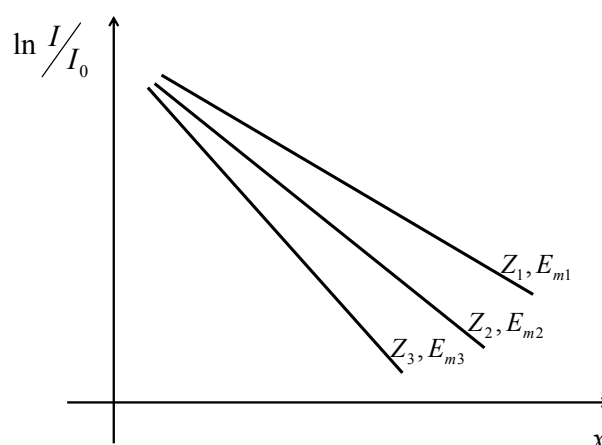
I_0 = taxa de contagem β sem o absorvedor

I = taxa de contagem β com o absorvedor

x = espessura do material absorvedor g/cm^2

O coeficiente de absorção do material (μ) se correlaciona com a energia máxima de emissão β (E_m), número atômico (Z) e número de massa (A) do material absorvedor (Fig. 4.6). Quanto maior o Z , maior é a inclinação da curva de transmissão e quando maior for a E_m , menor será sua inclinação.

Figura 4.6 – Curva de transmissão para partículas β para diferentes energias máximas de emissão β (E_m) e diferentes números atômicos do material absorvedor (Z).



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

A partir da compilação dos dados para uma ampla variação de energia das partículas β foi possível determinar empiricamente o coeficiente de atenuação mássico (μ/ρ), que pode ser descrito como^[41]:

$$\frac{\mu}{\rho} = 15,2 Z^{\frac{4}{3}} \frac{1}{A E_m^{1,485}} \quad (4.6)$$

em que:

$\frac{\mu}{\rho}$ = coeficiente de atenuação mássico em $cm^2 g^{-1} m^{-1}$

Z = número atômico do material absorvedor

A = número de massa do absorvedor

E_m = energia máxima da emissão β

A fração $\frac{I}{I_0}$ da equação 4.5 pode ser entendida como a eficiência de transmissão β (ϵ_i) de um determinado nuclídeo (i) através de um material absorvedor

de coeficiente de absorção μ_i . Com isso, a equação 4.5 pode ser rescrita da seguinte forma:

$$\ln \left(\frac{I}{I_0} \right)_i = \ln \epsilon_i = -\mu_i x \quad (4.7)$$

Para duas fontes compostas por nuclídeos diferentes, a partir da equação 4.7 temos:

$$\ln \epsilon_i = -\mu_i x \quad (4.8)$$

$$\ln \epsilon_j = -\mu_j x \quad (4.9)$$

Ao considerar que o material absorvedor das duas amostras apresentadas nas equações 4.8 e 4.9 são perfeitamente idênticos e que, portanto, a espessura (x) é a mesma, estas duas equações ficam da seguinte forma ao se dividir uma pela outra:

$$\frac{\ln \epsilon_i}{\ln \epsilon_j} = \frac{\mu_i}{\mu_j} \quad (4.10)$$

Esta equação implica em:

$$\epsilon_i = \exp \left[\ln \epsilon_j \frac{\mu_i}{\mu_j} \right] \quad (4.11)$$

De acordo com a equação 4.6, para absorvedores totalmente idênticos o coeficiente de absorção será proporcional a energia máxima das partículas β das fontes. Fazendo a divisão entre dois coeficientes, nessas condições, a partir da equação 4.6, temos:

$$\frac{\mu_i}{\mu_j} = \left(\frac{E_{mj}}{E_{mi}} \right)^{1,485} \quad (4.12)$$

Substituindo a equação 4.12 na equação 4.11, temos:

$$\epsilon_i = \exp \left[\ln \epsilon_j \left(\frac{E_{mj}}{E_{mi}} \right)^{1,485} \right] \quad (4.13)$$

Pode-se concluir que, sabendo-se a eficiência da transmissão das partículas β de um nuclídeo que atravessa um material absorvedor, e conhecendo-se também as energias máximas de cada nuclídeo envolvido, é possível determinar a eficiência da transmissão das partículas β de um segundo nuclídeo, desde que a composição e geometria dos materiais absorvedores sejam idênticas.

4.1.5.2 Cálculo das eficiências β de cada amostra

A eficiência de transmissão das partículas β das amostras de ^{166m}Ho da etapa 3 foram escolhidas para se determinar a eficiência β de referência. Sendo bem conhecida a intensidade γ da energia de 184 keV do ^{166m}Ho , já determinada a curva de eficiência de detecção do HPGe e conhecida as contagens do pico de absorção total desta energia no HPGe, é possível determinar a atividade destas amostras a partir da equação 2.1 que relaciona atividade, intensidade e área do pico de absorção. As correções aplicadas desta equação estão apresentadas de forma explícita na equação 4.14, descrita na próxima subseção.

Com as atividades das amostras e as contagens das desintegrações β determinadas para a etapa 3, obteve-se a eficiência β média ($\bar{\epsilon}_\beta$) para as amostras de ^{166m}Ho pela equação 2.3. A eficiência β média do ^{166m}Ho também foi calculada pelo método de coincidência segundo a equação 2.5. Os dados obtidos estão apresentados na tabela 4.4.

No gráfico apresentado na figura 4.7 é possível notar com mais facilidade que há compatibilidade (1σ , 2σ ou 3σ) entre os dois métodos utilizados para determinar a $\bar{\epsilon}_\beta$ das amostras.

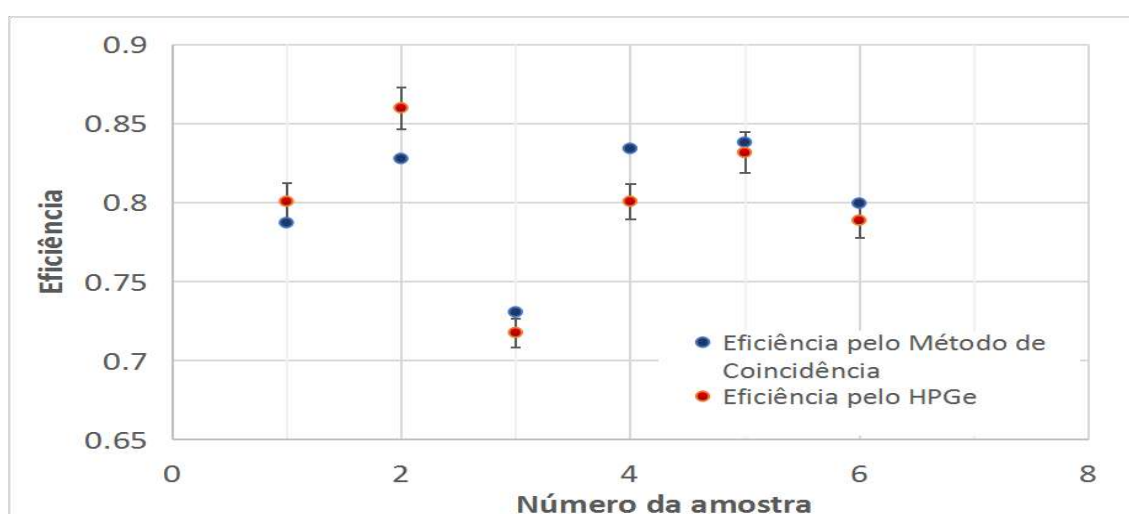
A eficiência β média representa a média ponderada das eficiência de cada ramo β do nuclídeo em estudo. Para se utilizar a equação 4.13 é necessário ter a referência da eficiência e energia de um ramo β específico.

De acordo com o que está apresentado na tabela 2.1, há dois ramos β de maior importância por terem maior probabilidade de emissão. Para encontrar a eficiência de um deles com melhor precisão, foi realizado um processo iterativo

Tabela 4.4 – Resultado das eficiências β média das amostras de ^{166m}Ho da etapa 3 calculadas a partir da atividade obtida nas medidas no HPGe e pelo método de coincidência. As incertezas correspondem à flutuação estatística nas taxas de contagens.

Etapa	Nº da fonte	$\bar{\epsilon}_\beta$ - HPGe [s^{-1}]	Incerteza [%]	$\bar{\epsilon}_\beta$ - Método de coincidência [s^{-1}]	Incerteza [%]
3	1	0,801	1,4	0,787	0,1
	2	0,860	1,5	0,828	0,1
	3	0,718	1,3	0,731	0,1
	4	0,801	1,4	0,834	0,1
	5	0,832	1,6	0,838	0,1
	6	0,789	1,4	0,800	0,1

Figura 4.7 – Comparação entre as eficiências obtidas pelo método de coincidências e o obtido pelo cálculo da atividade com detector de HPGe. A incerteza para eficiência calculada pelo método de coincidências é menor que o tamanho do ponto.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

utilizando a equação 4.13. Como uma aproximação inicial foi utilizada a eficiência β média como referência para o ramo β de maior probabilidade de emissão. A partir deste foi determinada a eficiência do outro ramo e com os novos dados de eficiência β foi calculado a média ponderada das eficiências. Como era esperado, o resultado da média ponderada difere da eficiência β média obtida experimentalmente. Então a partir deste resultado foi realizado uma nova aproximação para a eficiência β de referência e repetido o processo todo. A medida que o valor estimado se aproxima do valor real da eficiência β para aquele ramo β , a média ponderada calculada se

aproxima da eficiência β média experimental¹ que a incerteza da eficiência β média experimental.

A partir da determinação da eficiência deste um ramo β do ^{166m}Ho foi possível determinar a eficiência de cada ramo β presente em cada amostra e, conseqüentemente, as suas eficiências médias.

Na tabela 4.5 estão apresentados os valores para as eficiências β médias obtidas para as amostras de ^{167}Ho .

Tabela 4.5 – Resultado das eficiências β médias ($\bar{\epsilon}_\beta$) para as amostras de ^{167}Ho .

Etapa	Nº da fonte	$\bar{\epsilon}_\beta$	Incerteza [%]
1	1	0.9899	1,4
	2	0.9933	1,5
	3	0.9855	1,3
	4	0.9899	1,4
	5	0.9917	1,6
	6	0.9892	1,4

Como se pode notar, a eficiência β média para as fontes de ^{167}Ho foram de 99%. O mesmo ocorreu para a eficiência do ^{166g}Ho , o que já era esperado devido ao alto valor das energias β , considerando as características de detecção do $4\pi\beta$.

A partir da equação 2.3, dos valores obtidos para a eficiência β para o ^{167}Ho e das suas contagens de desintegrações β corrigidas pela presença de contaminantes, foi determinada a sua atividade pelo sistema absoluto.

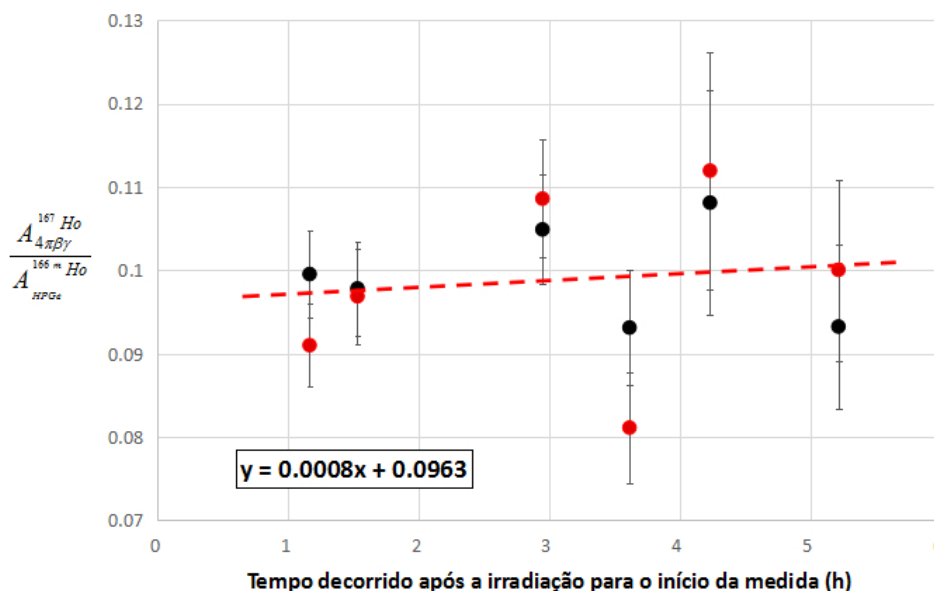
Para verificar se os resultados da atividade obtidos pelo sistema absoluto são consistentes e também se existe a possibilidade haver outros contaminantes desconhecidos nas amostras, foi realizada uma análise da razão entre as atividades do ^{167}Ho obtidas pelo sistema absoluto ($A_{4\pi\beta\gamma}^{167}\text{Ho}$), corrigida para o final da irradiação, e a atividade do ^{166m}Ho obtida a partir das medidas realizadas no HPGe ($A_{HPGe}^{166m}\text{Ho}$) de cada amostra. O que se espera é que esta razão permaneça constante para todas as amostras independentemente do horário em que foi realizada a medida.

No gráfico da figura 4.8 está a apresentada a análise das razões das atividades dos dois núclídeos pelos dois sistemas citados. A linha de tendência dos dados é dada por:

$$y = (0,0008 \pm 0,0018) \cdot x + (0,0963 \pm 0,0063)$$

¹ Foi realizado o processo iterativo até que a diferença entre a média ponderada da eficiência β calculada e a eficiência β média experimental fosse menor ($\approx 0,2\%$)

Figura 4.8 – Gráfico que mostra a variação da razão entre a atividade do ^{167}Ho ($A_{4\pi\beta\gamma}^{167}\text{Ho}$), corrigida para o final da irradiação, obtida pelo sistema absoluto e a atividade do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ($A_{\text{HPGe}}^{166\text{m}}\text{Ho}$) obtida pelo HPGe. Os dados em preto representam as medidas das amostras referentes à etapa 2.1 e os dados em vermelho são referentes à etapa 2.2.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

De acordo com a análise do coeficiente angular da linha de tendência e sua incerteza, pode-se considerar que esta razão tem comportamento constante, o que sugere que não houve outros “contaminantes” que pudessem influenciar significativamente nos resultados.

4.1.6 Determinação da curva de eficiência para o HPGe do sistema 1

Para a determinação da curva de eficiência do HPGe, foi utilizada uma fonte de ^{152}Eu , rastreada a padrões calibrados no sistema de coincidências $4\pi\beta - \gamma$. A eficiência do HPGe do *Sistema I* foi analisada com o programa *ALPINO*^[42]. Na tabela 4.6 estão apresentadas as características da fonte utilizada para a calibração deste detector.

Foram considerados 8 pontos experimentais e ajustado um polinômio de grau 3, em escala log-log, com o programa LOGFIT V.3^[44] que ajusta a função aplicando o *Método dos Mínimos Quadrados*^[45] com a *Matriz de Covariância*^[45]. Os dados dos parâmetros ajustados estão na tabela 4.7.

Na figura 4.9 é mostrado o gráfico dos resíduos percentuais do ajuste feito para a calibração em eficiência do detector de HPGe do Sistema I.

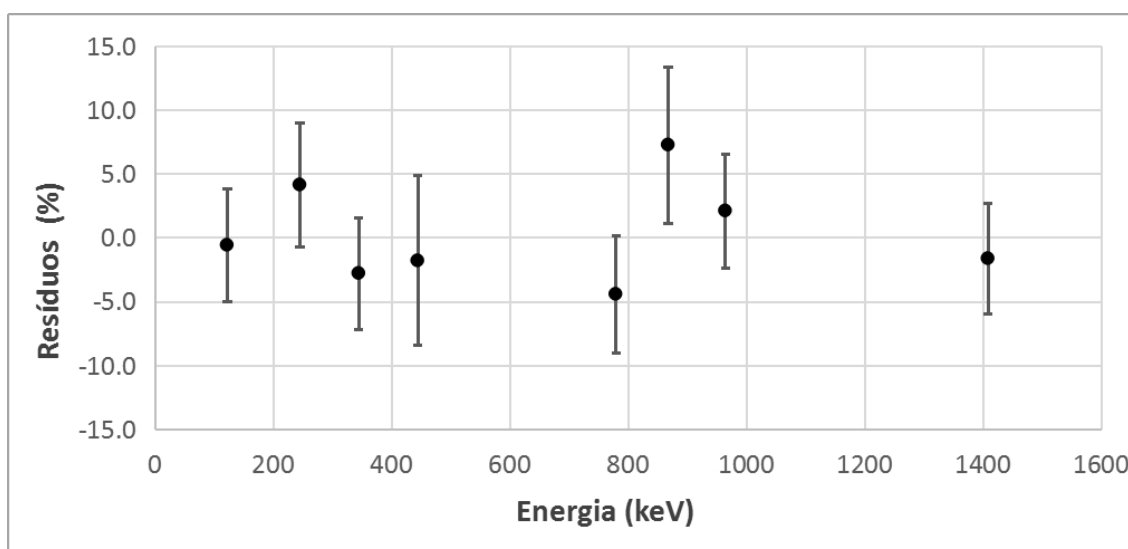
Tabela 4.6 – Características da fonte padrão utilizadas na calibração em eficiência de detecção do HPGe do *Sistema I*^[43]. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Nuclídeo	Meia-vida[a]	Energia γ [keV]	Intensidade γ por decaimento, I_γ [%]
¹⁵² Eu	13,522 (16)	121,7817 (3)	28,41 (13)
		244,6974 (8)	7,55 (4)
		344,2785 (12)	26,59 (12)
		443,965 (3)	3,12 (3)
		778,9045 (24)	12,97 (6)
		867,380 (3)	4,243 (23)
		964,079 (18)	14,50 (6)
		1408,013 (3)	20,85 (8)

Tabela 4.7 – Parâmetros obtidos na curva de calibração em eficiência de detecção do detector HPGe do Sistema I ajustados para o intervalo de energias entre 121 keV e 1408 keV.

Parâmetro	Valor obtido	Incerteza	Matriz de covariância dos parâmetros			
a_0	-51	9	88			
a_1	23	5	-45	27		
a_2	-3,6	0,8	7,5	-3,8	6,4	
a_3	0,19	0,04	-0,41	0,21	-0,04	0,002

Figura 4.9 – Gráfico dos resíduos percentuais do ajuste da calibração de eficiência no detector de HPGe do Sistema I.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

O χ^2 reduzido do ajuste foi de 1,06 e o valor obtido para a eficiência na energia de 347 keV do ^{167}Ho foi de $3,403 \cdot 10^{-3}$ com 2,89% de incerteza.

4.1.7 Área do pico de absorção total do ^{167}Ho

As contagens do pico de absorção total na energia de 347 keV do ^{167}Ho foram determinadas pela análise de espectro com o programa ALPINO^[42], assim como as correções para geometria, tempo morto, atenuação e empilhamento. O valor da correção para o efeito soma em cascata foi determinado com o programa NUCSUM^[46].

Na tabela. 4.8 estão apresentadas as contagens γ totais de cada amostra detectada no HPGe durante as medidas da primeira etapa, com as correções aplicadas, assim como suas respectivas incertezas.

Tabela 4.8 – Resultado das contagens totais γ para a energia de 347 keV do ^{167}Ho para as seis amostras da etapa 1 etapa.

Etapa	Nº da fonte	Contagens do ^{167}Ho	Incerteza [%]
1	1	3229	8,6
	2	3821	4,7
	3	3265	4,1
	4	2719	4,5
	5	2798	11,4
	6	3155	5,7

4.1.8 Cálculo da intensidade γ

A equação 2.1 relaciona atividade, área do pico de absorção total (“contagens”), eficiência γ e intensidade γ . Reescrevendo esta equação com os fatores de correção descritos explicitamente, obtém-se^[11]:

$$I_{\gamma} = \frac{S}{\epsilon_{\gamma}(E) A t_m f_{geo} f_{\tau} f_{At} f_{emp} f_{soma}} \quad (4.14)$$

em que:

A é a atividade da fonte (amostra);

S é a área do pico de absorção total;

$\epsilon_{\gamma}(E)$ é a eficiência γ em função da energia;

I_{γ} é a intensidade de emissão γ por decaimento;

t_m é o tempo de medida;

f_{geo} é o fator de correção da geometria da medida que leva em consideração a distância entre a amostra e o centro efetivo do detector;

f_τ é o fator de correção do tempo morto do detector;

f_{At} é o fator de atenuação do envoltório das fontes;

f_{emp} é o fator de correção do empilhamento dos picos; e,

f_{soma} é o fator de correção de soma em cascata.

Com a atividade do ^{167}Ho determinada a partir do sistema absoluto, a área do pico de absorção total da energia de 347 keV e a sua eficiência γ no HPGe e todas as demais correções apresentadas na equação 4.14, foram obtidos os valores de intensidade γ conforme mostrados na tabela 4.9.

Tabela 4.9 – Resultado das intensidade γ para a energia de 347 keV do ^{167}Ho para as seis amostras correspondentes as 12 medidas da etapa 2.

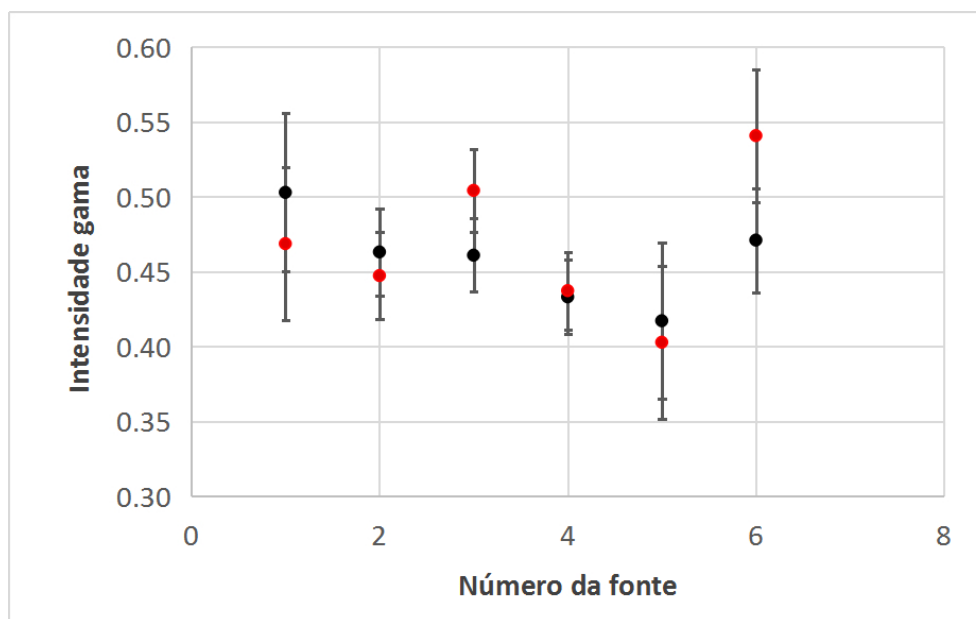
Referente à etapa	Nº da fonte	Intensidade gama, I_γ [10^{-1}]	Incerteza [%]
2.1	1	5,0	10,5
	2	4,6	6,3
	3	4,6	5,3
	4	4,3	5,7
	5	4,2	12,4
	6	4,7	7,4
2.2	1	4,7	10,9
	2	4,5	6,5
	3	5,0	5,5
	4	4,4	5,9
	5	4,0	12,7
	6	5,4	8,2

No gráfico da figura 4.10 pode-se notar que os valores obtidos para a intensidade γ para a energia do nuclídeo referido estão em concordância com 95% de confiabilidade.

A intensidade γ média dos dados apresentados na tabela 4.9 foi determinada a partir do ajuste de uma constante por meio do programa *LINFIT*^[47] e o seu valor resultou:

$$I_\gamma = 0,455 \pm 0,016$$

Figura 4.10 – Gráfico das intensidades γ da energia de 347 keV do ^{167}Ho em função das amostras para as medidas referentes à etapa 2.1 (preto) e 2.2 (vermelho).



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

4.2 Medida da seção de choque térmica e integral de ressonância

Nesta seção será descrita a análise dos dados para as medidas da seção de choque térmica e integral de ressonância. Uma breve descrição dos programas utilizados nessa seção estão apresentada no apêndice B.

4.2.1 Calibração em eficiência do detector HPGe

As características das fontes padrão utilizadas, como a meia-vida, intensidade de emissão γ e as energias, estão apresentadas na tabela 4.10.

Ao medir a fonte de ^{167}Ho no HPGe, verificou-se que a mesma emitia uma quantidade elevada de partículas β , resultando em aumento considerável no tempo morto do detector. Por este motivo, foi utilizado um filtro de 6,4 mm de alumínio para impedir a passagem dessas partículas. As fontes padrão foram medidas nessas condições, assim como todas as outras amostras neste detector.

Para a correção do efeito de soma em cascata, foi realizada a simulação desse efeito com o programa NUCSUM^[46].

A utilização do absorvedor de alumínio modifica o comportamento da curva de eficiência do detector HPGe, principalmente em baixas energias. Para interpolar os valores de eficiência nesta curva, nas regiões de baixa energia ou

Tabela 4.10 – Características das fontes padrões utilizadas na calibração em eficiência de detecção do HPGe^[43]. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Nuclídeo	Meia-vida [d]	Energia γ [keV]	Intensidade γ por decaimento, I_γ [%]
⁶⁰ Co	1923,95 (29)	1173,228 (3)	99,85 (3)
		1332,492 (3)	99,9826 (6)
¹³⁷ Cs	10979 (29)	661,657 (3)	84,99 (20)
¹³³ Ba	3846,7 (22)	276,3989 (12)	7,13 (6)
		302,8508 (5)	18,31 (11)
		356,0129 (7)	62,05 (19)
		383,8485 (12)	8,94 (6)
¹⁵² Eu	4936 (6)	121,7817 (3)	28,41 (13)
		244,6974 (8)	7,55 (4)
		344,2785 (12)	26,59 (12)
		411,1165 (12)	2,238 (10)
		443,965 (3)	3,12 (3)
		778,9045 (24)	12,97 (6)
		867,380 (3)	4,243 (23)
		964,079 (18)	14,50 (6)
		1112,076 (3)	13,41 (6)
		1408,013 (3)	20,85 (8)

onde houvesse uma escassez de pontos (entre 121 e 244 keV e entre 446 e 662 keV), foi feita uma simulação pelo Método de Monte Carlo com o programa *MCNP6*. Após convergência na comparação entre os resultados experimentais e os valores simulados, foi feito o ajuste da curva de eficiência com o programa *LOGFIT V.3*^[44] que ajusta a função aplicando o *Método dos Mínimos Quadrados*^[45] com a *Matriz de Covariância*^[45]. Foram considerados 17 pontos experimentais e ajustado um polinômio de grau 4, em escala log-log. Os dados dos parâmetros do ajuste estão apresentados na tabela 4.11.

Na figura 4.11 é mostrado o gráfico dos resíduos percentuais do ajuste feito para a calibração em eficiência do detector de HPGe.

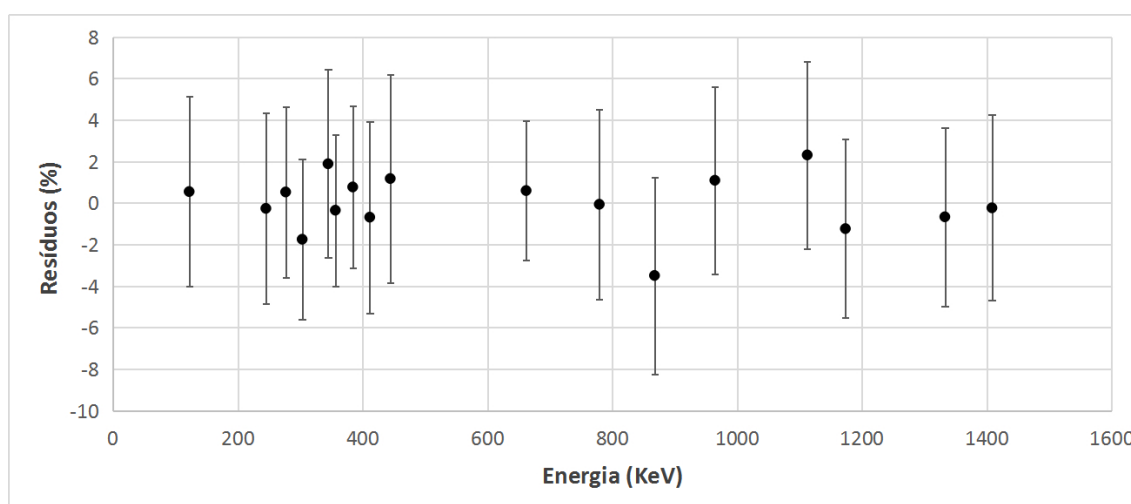
O valor do χ^2 obtido no ajuste foi 1,00.

A partir da determinação da curva de eficiência do detector HPGe e, conseqüentemente, a eficiência das energias de interesse referentes aos alvos desta parte do trabalho, foram determinadas as suas atividades.

Tabela 4.11 – Parâmetros obtidos na curva de calibração em eficiência de detecção do detector HPGe ajustados para a distância de 10 cm, no intervalo de energias entre 121 keV e 1408 keV.

Parâmetro	Valor obtido	Matriz de covariância dos parâmetros				
a_0	-126	870				
a_1	80	-580	388			
a_2	-19	144	-96	24		
a_3	2,0	-15,8	10,5	-2,6	0,3	
a_4	-0,078	0,642	-0,429	0,107	-0,012	0,0005

Figura 4.11 – Gráfico dos resíduos percentuais do ajuste da calibração de eficiência no detector de HPGe.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

4.2.2 Determinação do fluxo

A reação $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ possui seção de choque na região térmica muito próxima ao comportamento $1/v$, tendo apenas um leve afastamento desse comportamento próximo à região de corte de cádmio, em razão da presença de uma ressonância na energia de 8,906 eV^[11]. Além disso, o ^{198}Au possui meia-vida e intensidade γ bem conhecidas, como pode ser observado na Tabela 4.12.

Foram feitas três medidas independentes da fonte de ^{198}Au com o detector HPGe a uma distância de 10 cm da fonte. A determinação da atividade, corrigida para o final da irradiação, foi feita pelo programa *ALPINO V.3*^[42] e os resultados obtidos, assim como a média deles, estão apresentados na tabela 4.13.

Os parâmetros de ativação do Au utilizados para o cálculo do fluxo estão

Tabela 4.12 – Características do decaimento do ^{198}Au , radionuclídeo utilizado como monitor de fluxo ^[48]. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Radionuclídeo	Meia-vida [d]	Energia [keV]	Intensidade γ por decaimento, I_γ [%]
^{198}Au	2,6943 (3)	411,80205 (17)	95,62 (6)

Tabela 4.13 – Resultado das atividades do ^{198}Au (por grama de ^{197}Au) referente às medidas com e sem Cd, a sua média e suas respectivas incertezas.

Medida	Atividade sem Cd [$\cdot 10^{10}$ Bq]	Incerteza [%]	Atividade com Cd [$\cdot 10^{10}$ Bq]	Incerteza [%]
1	5,54	2,21	1,44	2,18
2	5,55	2,20	1,43	2,17
3	5,52	2,17	1,45	2,12
Média	5,54	2,19	1,44	2,16

apresentados na Tabela 4.14.

Tabela 4.14 – Parâmetros de ativação do Au utilizados para o cálculo do fluxo térmico (ϕ_t) e epitérmico (ϕ_{epi}). O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Seção de choque térmica, σ_0 [b] ^[49]	Integral de ressonância, I_0 [b] ^[49]	$g(T)$ ^[49]	s_0 ^[50]	Fator de Cádmiio, F_{Cd} ^[51]
98,65 (9)	1550 (28)	1,0054	17,2	0,9999 (1)

A partir dos dados das atividades do ^{198}Au foi determinado o fluxo convencional utilizando a equação 2.16 e em seguida foi determinado o fluxo térmico com a equação 2.17.

A razão de cádmio (R_{Cd}) para o Au foi calculada com a equação 2.12 e resultado foi de 3,85 com 3,08% de incerteza. A partir da R_{Cd} foi determinado o valor de $r\sqrt{T/T_0}$ pela equação 2.14 e seu resultado foi de 0,025. Para o fator k_δ foi utilizado o valor de 2,1399^[23] referente à espessura de Cd de 0,6 mm que foi a utilizada neste trabalho.

O cálculo do fluxo epitérmico foi realizado de acordo com a expressão 2.19 sendo os limites da integral E_1 e E_2 iguais a 0,5 eV e 2 MeV, respectivamente.

Os fatores de correção para a depressão do fluxo e auto-blindagem tanto para o fluxo térmico quanto para o epitérmico para Au são aproximadamente 1^[52,11,51] e o fator de afastamento do comportamento $1/E$ do fluxo epitérmico α na posição

24A, prateleira 5, do núcleo do reator IEA-R1 é de $(4,9 \pm 6,6) \cdot 10^{-3}$ [51], que pode ser considerado nulo devido à incerteza ser maior que seu valor.

Na tabela 4.15 estão apresentados os valores obtidos para os fluxos térmico e epitérmico, assim como as suas respectivas incertezas.

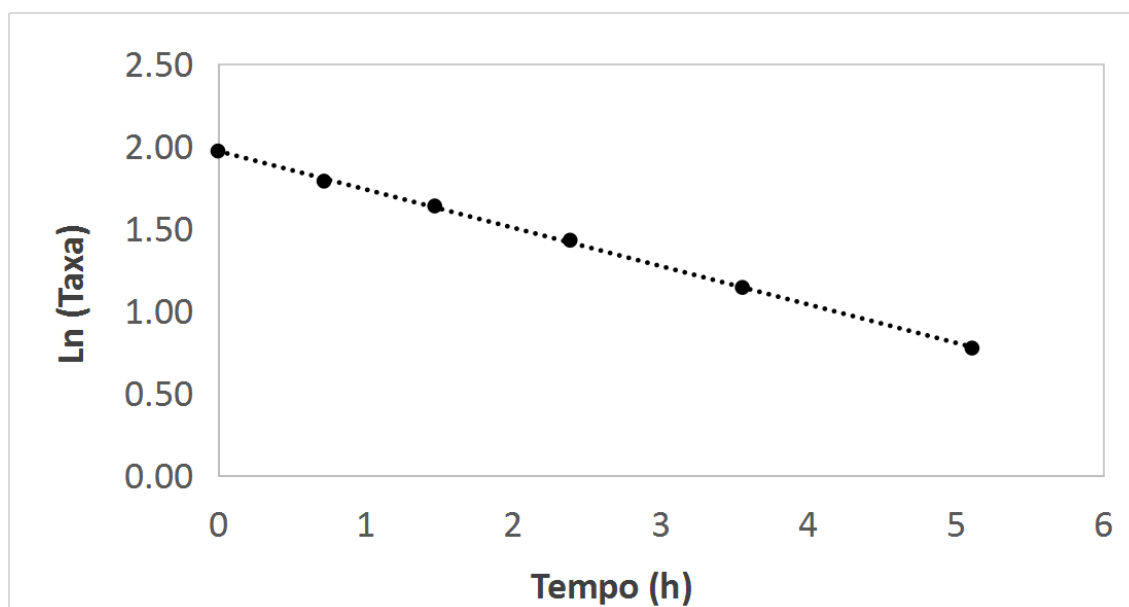
Tabela 4.15 – Fluxos térmico e epitérmico obtidos. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Monitor	Fluxo térmico, ϕ_t [10^{13} nêutrons \cdot cm $^{-2}$ \cdot s $^{-1}$]	Fluxo epitérmico, ϕ_{epi} [10^{12} nêutrons \cdot cm $^{-2}$ \cdot s $^{-1}$]
^{198}Au	2,96 (9)	8,63 (24)

4.2.3 Determinação da meia-vida do ^{167}Ho

Foi realizada a medida de meia-vida do ^{167}Ho . No gráfico da figura 4.12 está apresentado o logaritmo da taxa de desintegração em função do tempo. As incertezas na taxa de desintegração são menores que o tamanho do ponto.

Figura 4.12 – Gráfico do decaimento do ^{167}Ho em função do tempo. As incertezas na taxa de desintegração são menores que o tamanho do ponto.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

O coeficiente angular para a reta ajustada do gráfico apresentado na figura 4.12 foi de: $(-6,4722 \pm 0,0777) \cdot 10^{-5}$. Este coeficiente representa a constante

de decaimento e, a partir desta, foi determinado o seguinte tempo de meia-vida $T_{1/2}$ para o ^{167}Ho :

$$T_{1/2}(^{167}\text{Ho}) = 2,975 \pm 0,036 \text{ h}$$

4.2.4 Determinação do fator $g(T)$ de Westcott

Conforme observado na figura 2.8, devido ao comportamento não- $1/v$ da seção de choque para a região abaixo de 0,55 eV (corte de Cd), em que v é a velocidade do nêutron no meio, foi necessária a aplicação da correção pelo fator $g(T)$ de acordo com o formalismo de Westcott ^[27], em que T é a temperatura do nêutron. Para a determinação do valor de $g(T)$ foram utilizados os valores de seção de choque disponibilizados em site pela *National Nuclear Data Center* ^[22].

Foram realizados os cálculos das seções de choque efetivas a partir da equação 2.27 para duas situações. Uma em que foram utilizados os dados da NNDC, como já citado, e o outro cálculo foi utilizando os valores de seção de choque térmica com comportamento segundo a lei- $1/v$, usando o valor de energia mais baixa do arquivo da NNDC como referência. A partir das duas seções de choque calculadas, foi determinado $g(T)$ pela equação 2.35.

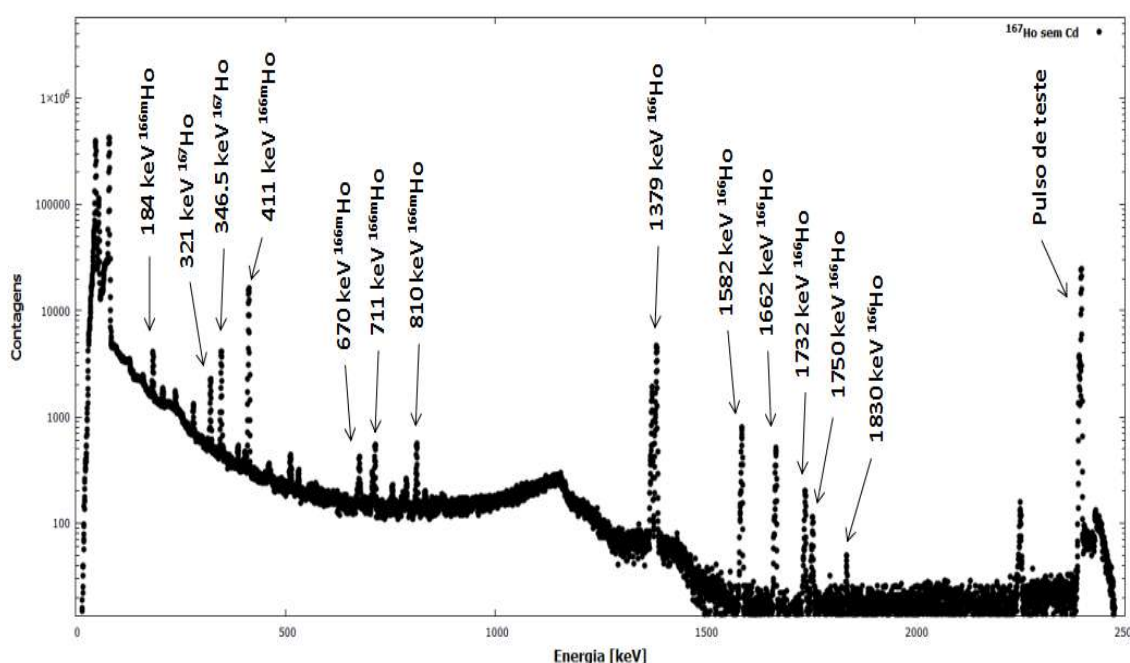
O valor obtido neste trabalho foi $g(T) = 1,275$, que é próximo ao valor encontrado na literatura para esse fator de correção (1,293^[7]). A incerteza foi definida pela diferença entre esses valores, portanto o valor utilizado para o $g(T)$ nesse trabalho é de:

$$g(T) = 1,275 \pm 0,018$$

4.2.5 Determinação da seção de choque e integral de ressonância

Após as irradiações dos conjuntos com Cd e sem Cd das fontes de Ho, foram feitas medidas no espectrômetro de HPGe a uma distância fonte-detector de 2 cm para ambas fontes, sendo que uma delas (sem Cd) também foi medida a 10 cm do detector para servir de referência para o valor da eficiência de detecção, utilizando a curva eficiência determinada nessa geometria. Na figura 4.13 é mostrado este espectro da medida da fonte de Ho sem Cd feita no espectrômetro de HPGe.

Figura 4.13 – Espectro obtido na medida da fonte de Ho no detector HPGe.



Fonte: Acervo pessoal, 2020.

Na tabela 4.16 estão apresentadas algumas características do decaimento do radionuclídeo produto (^{167}Ho) que foram utilizadas no cálculo da seção de choque. A intensidade de emissão γ absoluta utilizada foi aquela determinada no presente trabalho.

Tabela 4.16 – Características do decaimento do ^{167}Ho , radionuclídeo produto da reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$. O número entre parênteses representa a incerteza de um desvio padrão nos últimos dígitos.

Radionuclídeo	Meia-vida $T_{1/2}$ [h] ^[7]	Energia [keV] ^[49]	Intensidade de Emissão γ Absoluta, I_{γ} [%]
^{167}Ho	3,003 (18)	347 (2)	45,5 (16)

Utilizando o programa *ALPINO V.3*^[42] foram calculados os valores para as atividades do ^{167}Ho e os resultados estão apresentados na tabela 4.17. Os valores descritos na tabela se referem a atividade do ^{167}Ho por grama de $^{166\text{m}}\text{Ho}$ contido no alvo ao final da irradiação. Como a ativação dentro da cobertura de Cd é bem baixa, comparando à ativação sem o Cd, não foi possível verificar contagens significativas para a energia de 321,3 keV do ^{167}Ho .

Tabela 4.17 – Resultado das atividades obtidas para o ^{167}Ho (com e sem Cd) e suas respectivas incertezas.

Energia [keV]	Atividade sem Cd [kBq]	Incerteza [%]	Atividade com Cd [kBq]	Incerteza [%]
347	682	5,3	10,0	9,2

Os valores para o fator de auto-blindagem térmico G_e e epitérmico G_{epi} foram calculados com o programa *MATSSF*^[26] considerando a amostra composta por Ho e celulose. Os valores encontrados para estes parâmetros foram 0,9953(10) e 0,9994(1), respectivamente.

Para os cálculos da seção de choque térmica (σ_0) foi utilizada a equação 2.26, considerando as seguintes aproximações:

$$\lambda_2 \gg (\lambda_1 + \sigma_1 \phi)$$

e também,

$$(\lambda_1 + \sigma_1 \phi) \ll 1$$

Com isso, a equação 2.26 se torna:

$$\sigma_1 = \frac{A_2^0 \lambda_1}{A_1 \phi_t (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}})} \quad (4.15)$$

em que o índice 1 se refere ao alvo da reação e o índice 2 se refere ao produto desta.

Para o cálculo da integral de ressonância foi utilizada a expressão 2.19 e aplicado os fatores de correção descritos e relacionados com essa medida.

Na tabela 4.18 estão apresentados os resultados para seção de choque térmica e integral de ressonância do ^{166m}Ho .

Tabela 4.18 – Resultado obtidos para seção de choque térmica e a integral de ressonância para a reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ e suas respectivas incertezas.

Energia [keV]	Seção de choque térmica, σ_0 [kb]	Incerteza [%]	Integral de ressonância, I_0 [kb]	Incerteza [%]
347	2,2	11,0	2,6	9,5

5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Intensidade de emissão gama

Os valores obtidos para a medida de intensidade de emissão γ absoluta para a energia de 347 keV do ^{167}Ho neste trabalho estão apresentados na tabela 5.1, juntamente os outros valores encontrados na literatura.

Tabela 5.1 – Intensidade de emissão gama absoluta para a energia de 347 keV do ^{167}Ho

Autor	Intensidade γ , I_γ [%]	Ano
Funke <i>et al.</i> [53]	58	1968
Nuclear Data Sheet [54]	57,3	1976
Table of Isotopes [17]	56 ± 12	1997
Presente trabalho	$45,5 \pm 1,6$	2020

Como visto na tabela, há uma certa dificuldade em se fazer uma comparação precisa entre o valor obtido nesse trabalho e o valor apresentado por Funke *al.* e o valor publicado na *Nuclear Data Sheet*, devido a não apresentação das incertezas nesses valores. A escassez de dados, grandes incertezas ou a não apresentação destas, são algumas das evidências de que esta é uma medida de grande dificuldade.

Entretanto, observa-se que há compatibilidade entre o dado publicado na *Table of Isotopes* em 1997 e o presente trabalho. Utilizando o método de comparação *ZETA SCORE* [55] entre o dado apresentado na *Table of Isotopes* de 1997 e o obtido no presente trabalho, obteve-se o valor de 0,95. Neste teste estatístico, considera-se que para valores iguais ou inferiores a 1, os dados podem ser considerados concordantes entre si. Ressalta-se que a incerteza obtida no presente trabalho é significativamente menor que a apresentada na literatura.

O ^{166g}Ho é o “contaminante” que gera as maiores dificuldades para uma medida de intensidade gama do ^{167}Ho , segundo o procedimento adotado neste trabalho. O alto valor de seção de choque para a sua formação comparado com a seção de choque para a formação do metaestável a partir do ^{165}Ho , associado à abundância deste na amostra resulta em uma grande produção do ^{166g}Ho e, portanto, em uma alta atividade desse radionuclídeo. O detector de medida absoluta 4π possui um limite superior para taxas de contagem, acima do qual não é possível a

realização de medidas. Por esta razão, torna-se inviável irradiações longas para esta amostra, com o objetivo de aumentar a taxa de contagem γ do ^{167}Ho e com isso melhorar a estatística nas medidas realizadas no detector de HPGe. A otimização do experimento se dá pela realização da irradiação na estação pneumática em que se obtém menores atividades, porém é possível manipular a amostras imediatamente após a irradiação, resultando na maior razão de atividades possível entre estes dois radionuclídeos (A_{167}/A_{166g}) para este método.

Além da utilização da irradiação curta, é necessário realizar cálculos e irradiações prévias de forma que seja possível determinar a maior atividade possível, referente a soma de todos os radionuclídeos presentes na amostra, sem que haja a saturação do detector 4π . Esta otimização está relacionada com a precisão da quantidade de amostra que deve ser pipetada no recipiente a ser irradiado e o tempo que deve durar essa irradiação. À medida que a atividade total se afasta desse valor ideal, o experimento pode ser inviabilizado, seja por saturar o detector ou por não ser possível identificar a presença do ^{167}Ho em quantidade suficiente.

A complexidade destes fatores resultou na impossibilidade de se obter contagens suficientes no detector de HPGe, para que fosse possível fazer a medida de intensidade gama na energia de 321 keV do ^{167}Ho , que também é mal conhecida na literatura, mas possui intensidade de emissão inferior à da energia de 347 keV.

A manipulação de fontes preparadas em filmes finos é outra dificuldade do experimento, pois estas se rompem com facilidade, resultando na perda da amostra. Dependendo do local de seu rompimento e da etapa de coleta de dados, isto pode resultar até perda de todo o experimento, por exemplo, se o filme se romper no interior do detector durante a primeira etapa. Este é um dos motivos que faz com que ter um detector de medida absoluta associado a um detector de HPGe é vantajoso, pois além de reduzir os cálculos de correções de tempo de decaimento, por exemplo, entre duas medidas, reduz a manipulação das amostras e conseqüentemente evita acidentes.

Diante de tudo que foi exposto neste capítulo, o LMN pode ser considerado como um dos locais mais apropriados para realização deste experimento, em razão da: disponibilidade de um detector de medida absoluta em geometria 4π associado a um detector de HPGe para medidas simultâneas; ter ao lado um reator nuclear com a acesso à uma estação pneumática, e; ter profissionais capacitados servindo de apoio para todos os procedimentos realizados.

5.2 Meia-vida do ^{167}Ho

Nesta parte do trabalho, foi realizada a medida de meia-vida $T_{1/2}$ do ^{167}Ho . O resultado obtido, em comparação com os valores encontrados na literatura, são apresentados na tabela 5.2.

Tabela 5.2 – Meia-vida do ^{167}Ho .

Autor	Meia-vida, $T_{1/2}$ [h]	Ano
Handley <i>et al.</i> [56]	3,0	1955
Wille e Fink [57]	$3,1 \pm 0,1$	1959
Katoh <i>et al.</i> [7]	$3,003 \pm 0,018$	2002
Presente trabalho	$2,975 \pm 0,036$	2020

Como é possível observar pela tabela, os valores encontrados na literatura para a meia-vida do ^{167}Ho estão em concordância entre si, inclusive com o valor obtido no presente trabalho. Este valor não foi o que apresentou menor incerteza, dentre os relacionados na tabela, porém pode-se dizer que foi obtido com boa precisão, pois sua incerteza é de apenas 1,2%. Para se chegar um resultado melhor do que o que foi encontrado neste trabalho seria necessário produzir maior quantidade de ^{167}Ho para que fosse possível abranger maior número de meias-vidas nas medidas e com boa estatística de contagem. Porém, como a meia-vida deste radionuclídeo é bem conhecida, sua determinação se torna apenas uma atividade secundária, não tendo sido considerada essencial para o desenvolvimento do presente trabalho.

5.3 Seção de choque térmica e integral de ressonância

Os valores obtidos para a medida de seção de choque térmica e integral de ressonância para a reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ neste trabalho estão apresentados na tabela 5.3, juntamente os outros valores encontrados na literatura.

Também foi realizada a comparação entre os resultados encontrados na literatura e o presente trabalho pelo método de comparação *ZETA SCORE* [55]. Os valores estão apresentados na tabela 5.4. Analisando esta tabela, nota-se que não há compatibilidade entre nenhum dos resultados apresentados por Masyanov *et al.* [4] e os deste trabalho. Para a seção de choque térmica, há compatibilidade com o resultado de Harada *et al.* [5] e com o resultado de Katoh *et al.* [7], porém é quase

Tabela 5.3 – Seção de choque térmica (σ_0) e integral de ressonância (I_0) para a reação $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$

Autor	Seção de choque térmica σ_0 [kb]	Integral de ressonância I_0 [kb]	Ano
Masyanov <i>et al.</i> [4]	$9,14 \pm 0,65$	$1,14 \pm 0,09$	1991
Harada <i>et al.</i> [5]	3 ± 1	-	2000
Krane [6]	$4,1 \pm 0,7$	-	2000
Katoh <i>et al.</i> [7]	$3,1 \pm 0,8$	$10,0 \pm 2,7$	2002
Presente trabalho	$2,2 \pm 0,2$	$2,6 \pm 0,2$	2020

incompatível com o resultado de Krane^[6], assim como para a integral de ressonância apresentada por Katoh *et al.*^[7].

Tabela 5.4 – Resultados do *ZETA SCORE*^[55] a para seção de choque térmica σ_0 e integral de ressonância I_0 entre os dados da literatura e o presente trabalho.

Autor	ZETA SCORE(σ_0)	ZETA SCORE(I_0)
Masyanov <i>et al.</i> [4]	10,20	6,66
Harada <i>et al.</i> [5]	0,78	-
Krane [6]	2,47	-
Katoh <i>et al.</i> [7]	1,09	2,73

Levando-se em consideração a análise da característica das ressonâncias apresentada no gráfico da figura 2.8 que foi produzido com base nos dados da NNDC^[22], nota-se que a segunda ressonância (que é a primeira acima do corte de Cd) é estreita e tem seu pico com valor da ordem de 10 kb, a partir disso e observando a área que compreende a região epitérmica é pouco provável que a integral de ressonância tenha um valor tão alto como 10 kb.

As maiores dificuldades encontradas nesta parte do trabalho estão relacionadas à baixa atividade do ^{167}Ho produzida na reação, o que resultou em baixa estatística de contagem das amostras. Associado a isto, a influência das partículas β no detector provenientes de todos os radionuclídeos presentes na amostra, tendo a maior contribuição do ^{166g}Ho , aumentou o tempo morto do detector, obrigando a utilização de um filtro absorvedor para que as medidas fossem realizadas. Como o ^{167}Ho possui meia-vida relativamente curta e a sua atividade era baixa, todo o tempo utilizado para contornar as dificuldades naturais do experimento geravam maior dificuldade devido ao decaimento do radionuclídeo de interesse. Estes são os motivos que impossibilitaram se fazer mais medidas da mesma amostra e também

se obter estatística de contagem suficiente para se analisar o pico de absorção total da energia de 321 keV do ^{167}Ho .

Para se aumentar a atividade do produto de uma reação de captura, considerando o fluxo de nêutrons constante, é necessário aumentar a quantidade de amostra a ser irradiada ou aumentar o tempo de irradiação. A quantidade de amostra disponível para este experimento foi limitada e, por isso, requereu precaução com a quantidade a ser utilizada, para que não viesse a faltar no decorrer de outros experimentos que façam sua utilização. O outro ponto seria aumentar o tempo de irradiação, porém nas irradiações envolvendo a cobertura de Cd, ocorre o aquecimento destas amostras e então elas retornam mais escuras. Não se sabe ao certo os efeitos deste aquecimento, se há a possibilidade de se perder amostra neste aquecimento. Por isso, foi adotado que o tempo de irradiação não fosse superior a 30 min na posição específica deste trabalho, sendo este um tempo padrão em que as amostras ainda retornam íntegras das irradiações.

Para se fazer a medida de seção de choque térmica e integral de ressonância por um método que leve em consideração a dupla captura do ^{165}Ho , via ^{166g}Ho , é necessário preparar dois pares de irradiações com concentrações de ^{166m}Ho diferentes ou tempos de irradiações diferentes entre cada par que é composto por uma amostra “nua” e a outra coberta com Cd. Pela resolução das equações referentes as atividades dessas amostras é possível determinar a contribuição da atividade do ^{167}Ho que é proveniente do ^{166g}Ho ^[7]. Apesar de não ser aplicado o método descrito, não se espera que haja grande influência no resultado, pois, como já foi mostrado em outro trabalho^[7], a contribuição da atividade proveniente do ^{166g}Ho é muito baixa comparada a atividade do ^{167}Ho proveniente do ^{166m}Ho .

6 CONCLUSÃO

No presente trabalho, foi determinada a intensidade de emissão γ absoluta para a energia de 347 keV do ^{167}Ho e verificou-se que é compatível com o dado mais recente presente na literatura, porém com incerteza muito menor (3,5%) que esta. O valor obtido para esta intensidade gama foi de $0,455 \pm 0,016$. Foi realizada a medida de meia-vida do núcleo produto da reação e obteve-se o valor de $2,975 \pm 0,036$ h que é compatível com os outros valores encontrados na literatura.

A seção de choque térmica e integral de ressonância para a reação $^{166\text{m}}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ também foram determinadas e seus valores resultaram $2,2 \pm 0,2$ kb e $2,6 \pm 0,2$ kb, respectivamente. Nesta medida foi obtida uma incerteza 50% menor que a incerteza dos últimos trabalhos da literatura. O que possibilitou essa redução na incerteza foi a inclusão no presente trabalho da medição da medida intensidade de emissão γ absoluta com maior exatidão.

7 REFERÊNCIAS

- [1] YAMAGUCHI, M., MENDONÇA, A. G. e SANTOS Aand Osso Jr., J. A. “Perspectiva de Produção de ^{99}Mo Via Captura Radioativa no ^{98}Mo Utilizando o Reator IEA-R1 a 5 MW e Operando Continuamente 5 Dias por Semana”. Em: *Anais do XI ENFIR/IV ENAN* (1997).
- [2] NAKAMURA, S. et al. “Precise Measurements of Neutron Capture Cross Sections for LLFPs and MAs”. Em: *Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal: Beyond the Fukushima Accident*. Ed. por K. NAKAJIMA. Tokyo: Springer Japan, 2015, pp. 39–46. ISBN: 978-4-431-55111-9.
- [3] KÄPPELER, F. “s-Process nucleosynthesis and the interior of Red Giants”. Em: *Nuclear Physics A 752* (2005). Proceedings of the 22nd International Nuclear Physics Conference (Part 2), pp. 500–509. ISSN: 0375-9474.
- [4] MASYANOV, S. M., ANUFRIEV, V. A. e KOROSTYLEV, V. A. “Resonance parameters of ^{165}Ho and ^{166m}Ho ”. Em: *Atomic Energy* 73.2 (ago. de 1992), pp. 673–675.
- [5] HARADA, H. et al. “Measurement of Effective Neutron Capture Cross Section of ^{166m}Ho using Two Step Irradiation Technique”. Em: *Journal of Nuclear Science and Technology* 37.9 (2000), pp. 821–823.
- [6] KRANE, K. S. “Thermal neutron capture cross sections of long-lived nuclei measured by activation”. Em: *AIP Conference Proceedings* 529.1 (2000), pp. 111–118.
- [7] KATOH, T. et al. “Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$ Reaction using a Two-Step Irradiation Technique”. Em: *Journal of Nuclear Science and Technology* 39.7 (2002), pp. 705–715.
- [8] MAIDANA, N., DIAS, M. e GERALDO, L. “Measurements of U-235 Fission Neutron Spectrum Averaged Cross Sections for Threshold Reactions”. Em: *Radiochimica Acta* 64 (1994), pp. 7–10.
- [9] MAIDANA, N., DIAS, M. e KOSKINAS, M. F. “Measurement of thermal neutron capture cross section of Cs-137”. Em: *Radiochimica Acta* 83 (1998), pp. 117–119.

- [10] MAIDANA, N., DIAS, M. e KOSKINAS, M. F. "Measurement of the Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of Am-241". Em: *Radiochimica Acta* 89 (2001), pp. 419–423.
- [11] MAIDANA, N. L. "Medida de seccões de choque para reacções de captura de nêutrons no ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{241}Am considerando a formação de estados isoméricos". Tese de doutorado. Universidade de São Paulo, 2000.
- [12] MAIDANA, N. et al. "Co 57 (n,γ) Co 58 reaction cross section: Thermal and resonance integral measurements and energy dependence". Em: *Physical Review C - PHYS REV C* 70 (2004).
- [13] NAKAMURA, S. et al. "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of ^{90}Sr and ^{166m}Ho ". Em: *Journal of Nuclear Science and Technology* 39.sup2 (2002), pp. 258–261.
- [14] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ho-166m_tables.pdf> (acesso em 30/10/2019).
- [15] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ho-166_tables.pdf> (acesso em 30/10/2019).
- [16] RAJPUT, M. U. et al. "Measurement of thermal neutron cross section and resonance integral for the $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166g}\text{Ho}$ reaction". Em: *Radiochimica Acta* 97.2 (2009), pp. 63–69. URL: <<https://www.degruyter.com/view/journals/ract/97/2/article-p63.xml>>.
- [17] FIRESTONE, R. B. et al. *The 8th edition of the Table of Isotopes*. Hungary: Springer, 1997. ISBN: 963-7775-55-2. URL: <http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:29029102>.
- [18] MOREIRA, D. et al. "Determination of ^{198}Au X-rays emission probabilities". Em: *Applied Radiation and Isotopes* 68.7 (2010). Proceedings of the 17th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications (ICRM 2009), pp. 1566–1570. ISSN: 0969-8043. URL: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969804309007428>>.
- [19] CAMPION, P. J. "The Standarization of Radioisotopes by Beta-Gamma Coincidence Method Using High Efficiency Detectors". Em: *Int. J. Appl. Radiat. Isot* 4 (1959), pp. 232–248.
- [20] BAERG, A. P. "Measurement of radioactive desintegration rate by the coincidence method". Em: *Metrologia* 2.1 (1966), pp. 23–32.

- [21] TSOULFANIDIS, N. *Measurement and Detection of Radiation*. McGraw-Hill series in nuclear engineering. Hemisphere Publishing Corporation, 1983. ISBN: 9780070653979.
- [22] NNDC. *Cross section: $^{166m}\text{Ho}(n, \gamma)^{167}\text{Ho}$* . url:<[https://www.nndc.bnl.gov/sigma/getPlot.jsp?evalid=15251 &mf=3&mt=102&nsub=Neutron%20reactions](https://www.nndc.bnl.gov/sigma/getPlot.jsp?evalid=15251&mf=3&mt=102&nsub=Neutron%20reactions)>. (acesso em 31/01/2020).
- [23] WESTCOTT, C. H., WALKER, W. H. e ALEXANDER, T. K. “Effective Cross Sections and Cadmium Ratios for the Neutron Spectra of Thermal Reactors”. Em: *Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy* (1959).
- [24] MUEHLHAUSE, C. O. “Neutron Physics. K. H. Beckurts and K. Wirtz. Translated from the second German edition (1964) by L. Dresner. Springer-Verlag, New York, 1964. x + 444 pp. Illus. 17”. Em: *Science* 148.3669 (1965), pp. 489–489. ISSN: 0036-8075. URL: <<https://science.sciencemag.org/content/148/3669/489.1>>.
- [25] BOTHE, W. “Zur Methodik der Neutronensonden”. Em: *Z. Phys* 120 (1943), p. 437.
- [26] IAEA. *MATSSF Program*. (acesso em 12/05/2020). 2016. URL: <<https://www-nds.iaea.org/naa/matssf/>>.
- [27] WESTCOTT, C. “Effective Cross Section Values for Well-Moderated Thermal Reactor Spectra. (3rd Edition Chalk River)”. Em: *Atomic Energy of Canada Limited* (1960).
- [28] WESTCOTT, C. H. “The specification of neutron flux and nuclear cross-sections in reactor calculations”. Em: *Journal of Nuclear Energy (1954)* 2.1 (1955), pp. 59–75. ISSN: 0891-3919. URL: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0891391955900176>>.
- [29] TOYODA, E. Y. “Evolução das doses no ambiente do reator IEA-R1 e tendência com base nos resultados atuais”. Tese de doutorado. Universidade de São Paulo, 2016.
- [30] USP, J. da. *IEA-R1*. (acesso em 06/05/2020). 2017. URL: <<https://jornal.usp.br/tag/iea-r1/>>.
- [31] HINO, Y. et al. “Absolute measurement of ^{166m}Ho radioactivity and development of sealed sources for standardization of gamma-ray emitting nuclides”. Em: *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine* 52.3 (2000), pp. 545–549.

- [32] TAKEDA, M. N. “Aplicação do método de monte carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexos em sistema de coincidências $4\pi\beta - \gamma$ ”. Tese de doutorado. Universidade de São Paulo, 2006.
- [33] KNOLL, G. *Radiation Detection and Measurement*. Wiley, 2010, p. 159.
- [34] ORTEC. *905 Series NaI(Tl) Scintillation Radiation Detectors*. (acesso 04/05/2020). 2020. URL: <<https://www.ortec-online.com/products/radiation-detectors/scintillation-detectors/scintillation-detector-types/905-series>>.
- [35] CANBERRA, M. T. *Reverse Electrode Coaxial Ge Detectors*. (acesso em 05/05/2020). 2020. URL: <<http://www.gammadata.se/assets/Uploads/REGe-Detector-SS-C49319.pdf>>.
- [36] DIAS, M. S. “SCTAC68V - Manual do usuário”. Em: *Relatório Interno* (2017).
- [37] EREZTECH.COM. *Holmium (III) chloride*. 2020. URL: <<https://ereztech.com/product/holmium-iii-chloride-10138-62-2>> (acesso em 10/08/2020).
- [38] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides*. (acesso em 10/05/2020). 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-152_tables.pdf>.
- [39] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. (acesso em 10/05/2020). 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-154_tables.pdf>.
- [40] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. (acesso em 10/05/2020). 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-155_tables.pdf>.
- [41] MAHAJAN, C. S., ARTS, R. G. B. e LAKHOTIA, S. “Mass attenuation coefficients of beta particles in elements”. Em: *Science Research Reporter* (2012), pp. 135–141.
- [42] DIAS, M. S. “ALPINO - Manual do usuário”. Em: *Relatório Interno* (2001).
- [43] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm> (acesso em 31/10/2019).
- [44] DIAS, M. S. “Um código para o método dos mínimos quadrados com análise de covariância”. Em: *Relatório Interno* (2001).
- [45] HELENE, O. *Metodos dos Minimos Quadrados*. LIVRARIA DA FISICA, 2006. ISBN: 9788588325548. URL: <<https://books.google.com.br/books?id=O3bYk8Qc8rQC>>.
- [46] DIAS, M. S. “NUCSUM - Manual do usuário”. Em: *Relatório Interno* (2017).

- [47] DIAS, M. S. “Um código para o método dos mínimos quadrados com análise de covariância”. Em: *Relatório Interno* (2001).
- [48] NUCLEIDE.ORG. *Table de Radionucléides BNM-LNHB/CEA*. 2004. URL: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Au-198_tables.pdf> (acesso em 31/10/2019).
- [49] IAEA. *Live chart of nucleides*. (acesso 04/11/2019). 2019. URL: <<https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>>.
- [50] CORTE, F. D. e SIMONITS, A. “Recommended nuclear data for use in the k0 standardization of neutron activation analysis”. Em: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 85.1 (2003), pp. 47–67. ISSN: 0092-640X. URL: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X03000366>>.
- [51] BARROS, L. F. “Determinação de k_0 e Q_0 para as reações $^{74}\text{Se}(n,\gamma)^{75}\text{Se}$, $^{113}\text{In}(n,\gamma)^{114m}\text{In}$, $^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$ e $^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$ ”. Tese de doutorado. Universidade de São Paulo, 2018, p. 71.
- [52] KOSKINAS, M. F. “Medida do fluxo térmico, epitérmico e rápido no reator IEA-R1 pelo método de ativação de folhas”. Tese de doutorado. Universidade de São Paulo, 1979.
- [53] FUNKE, L. et al. “Niveaustuktur in ^{167}Er ”. Em: *Nuclear Physics A* 118.1 (1968), pp. 97–113. ISSN: 0375-9474. URL: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947468901899>>.
- [54] HARMATZ, B. “Nuclear data sheets for $A = 167$ ”. Em: *Nuclear Data Sheets* 17.1 (1976), pp. 143–192. ISSN: 0090-3752. URL: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375276800233>>.
- [55] NIST. *ISO 13528 ZETA SCORE*. (acesso em 21/05/2020). 2012. URL: <<https://www.itl.nist.gov/div898/software/dataplot/refman2/auxillar/zetascor.htm>>.
- [56] HANDLEY, T. H., LYON, W. S. e OLSON, E. L. “Holmium-167”. Em: *Phys. Rev.* 98 (3 maio de 1955), pp. 688–689. URL: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.98.688>>.
- [57] WILLE, R. G. e FINK, R. W. “Activation Cross Sections for 14.8-Mev Neutrons and Some New Radioactive Nuclides in the Rare Earth Region”. Em: *Phys. Rev.* 118 (1 abr. de 1960), pp. 242–248. URL: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.118.242>>.

- [58] SEMKOW, T., PAREKH, P. e VIRGIL, M. “Coincidence summing in gamma-ray spectroscopy”. Em: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 290 (maio de 1990), pp. 437–444.
- [59] ALAMOS-NATIONAL. *MCNP6*. (acesso em 11/05/2020). 2020. URL: <<https://mcnp.lanl.gov/>>.

APÊNDICE A – ATIVIDADE DO ^{167}Ho INDUZIDA POR CAPTURA RADIATIVA DE NÊUTRONS EM AMOSTRA CONTENDO ^{165}Ho E $^{166\text{M}}\text{Ho}$

Seja N_5 o número de átomos do núcleo-alvo de ^{165}Ho presentes na amostra. Sendo N_{6m} a soma do número de átomos de $^{166\text{m}}\text{Ho}$ presentes na amostra inicialmente e o número de átomos produzidos por captura radiativa e N_6 o número de átomos formados por captura radiativa de $^{166\text{g}}\text{Ho}$, após o bombardeamento de nêutrons no núcleo-alvo.

Sendo o núcleo-alvo (N_5) um isótopo estável, a variação do número de átomos deste se dará apenas por meio de sua “queima” resultando na formação de dois isótopos diferentes e aquele deve variar da seguinte forma:

$$\frac{dN_5}{dt} = -N_5 \sigma_{5.6m} \phi - N_5 \sigma_{5.6} \phi = -(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) N_5 \phi \quad (\text{A.1})$$

sendo:

$\sigma_{5.6m}$ = seção de choque do ^{165}Ho para formar o $^{166\text{m}}\text{Ho}$

$\sigma_{5.6}$ = seção de choque do ^{165}Ho para formar o $^{166\text{g}}\text{Ho}$

ϕ = fluxo de nêutrons

O primeiro termo se refere a taxa de formação do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e o segundo é referente a taxa de formação do $^{166\text{g}}\text{Ho}$.

Resolvendo a equação diferencial acima pelo método de separação de variáveis, temos:

$$\frac{dN_5}{N_5} = -(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi dt \quad (\text{A.2})$$

$$\int \frac{dN_5}{N_5} = - \int (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi dt \quad (\text{A.3})$$

$$\ln N_5 = -(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t + K_1 \quad (\text{A.4})$$

em que K_1 é uma constante qualquer.

$$e^{\ln N_5} = e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} e^{K_1} \quad (\text{A.5})$$

$$N_5 = e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} e^{K_1} \quad (\text{A.6})$$

Quando $t = 0 \Rightarrow N_5 = N_5^0$ sendo este o número de átomos de ^{165}Ho na amostra no início, antes da ativação. Substituindo essa informação na equação anterior temos que é $e^{K_1} = N_5^0$, portanto reescrevendo a equação anterior, temos:

$$N_5(t) = N_5^0 e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} \quad (\text{A.7})$$

em que t é o tempo de irradiação.

Agora analisando a variação dos núcleos dos átomos de ^{166m}Ho na amostra, considerando que: inicialmente havia uma certa quantidade desse isótopo (N_{6m}^0); há formação de átomos de ^{166m}Ho através da ativação do ^{165}Ho ; há decaimento do ^{166m}Ho ; e há ativação deste isótopo formando o ^{167}Ho .

Com isso temos:

$$\frac{dN_{6m}}{dt} = N_5 \sigma_{5.6m} \phi - \lambda_{6m} N_{6m} - N_{6m} \sigma_{6m} \phi \quad (\text{A.8})$$

sendo:

λ_{6m} = a constante de decaimento dos núcleos radioativos de ^{166m}Ho

σ_{6m} = a seção de choque dos núcleos de ^{166m}Ho formando ^{167}Ho

Agora, substituindo o N_5 da equação A.8 pela equação A.7, temos:

$$\frac{dN_{6m}}{dt} = N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} - \lambda_{6m} N_{6m} - N_{6m} \sigma_{6m} \phi \quad (\text{A.9})$$

Resolvendo a equação diferencial acima, temos:

$$\frac{dN_{6m}}{dt} + (\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) N_{6m} = N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} \quad (\text{A.10})$$

Multiplicando ambos os lados por $e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t}$, temos:

$$e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} \frac{dN_{6m}}{dt} + e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} (\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) N_{6m} = N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6}) \phi t} e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} \quad (\text{A.11})$$

Como,

$$\frac{d(e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t})}{dt} = (\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} \quad (\text{A.12})$$

Podemos reescrever a equação (A.11), da seguinte forma:

$$e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} \frac{dN_{6m}}{dt} + \frac{d(e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t})}{dt} N_{6m} = N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \sigma_{6m} \phi - \lambda_{6m}) t} \quad (\text{A.13})$$

Na primeira parte da equação anterior temos a regra de derivação do produto desenvolvida, então reescrevendo a equação com a passagem anterior a esta regra temos:

$$\frac{d(e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} N_{6m})}{dt} = N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi t + \lambda_{6m} t} \quad (\text{A.14})$$

$$\int d(e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} N_{6m}) = \int [N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi t + \lambda_{6m} t}] dt \quad (\text{A.15})$$

$$e^{(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi) t} N_{6m} = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi t + \lambda_{6m} t}}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} + K_2 \quad (\text{A.16})$$

Em que K_2 é uma constante qualquer, então temos:

$$N_{6m} = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t}}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} + K_2 e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \quad (\text{A.17})$$

Para o caso quando $t = 0 \Rightarrow N_{6m} = N_{6m}^0$, ou seja, há apenas os núcleos de ^{166m}Ho iniciais na amostra, temos:

$$N_{6m}^0 = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} + K_2 \quad (\text{A.18})$$

Então,

$$K_2 = N_{6m}^0 - \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} \quad (\text{A.19})$$

Portanto,

$$N_{6m} = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t}}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} + \left[N_{6m}^0 - \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} \right] e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \quad (\text{A.20})$$

$$N_{6m}(t) = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} [e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} - e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t}] + N_{6m}^0 e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \quad (\text{A.21})$$

Sendo a atividade total de ^{166m}Ho (A_{6m}) na amostra após a irradiação dada por $A_{6m} = \lambda_{6m} N_{6m}$, temos:

$$A_{6m}(t) = \frac{\lambda_{6m} N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} [e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} - e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t}] + A_{6m}^0 e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \quad (\text{A.22})$$

Sendo A_{6m}^0 a atividade de ^{166m}Ho presente inicialmente na amostra.

O número de átomos N_6 e a atividade do ^{166g}Ho (A_6) pode ser calculada de forma similar ao que foi apresentado anteriormente, com isso obtém-se:

$$N_6(t) = \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \phi}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6)\phi} [e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} - e^{-(\lambda_6 + \sigma_6\phi)t}] \quad (\text{A.23})$$

$$A_6(t) = \frac{\lambda_6 N_5^0 \sigma_{5.6} \phi}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6)\phi} [e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} - e^{-(\lambda_6 + \sigma_6\phi)t}] \quad (\text{A.24})$$

em que:

λ_6 é a constante de decaimento dos núcleos radioativos de ^{166g}Ho , e;

σ_6 é a seção de choque dos núcleos de ^{166g}Ho formando ^{167}Ho .

Agora vamos analisar o caso da produção de ^{167}Ho (N_7) a partir da amostra contendo ^{165}Ho e ^{166m}Ho .

$$\frac{dN_7}{dt} = N_{6m} \sigma_{6m} \phi + N_6 \sigma_6 \phi - \lambda_7 N_7 - N_7 \sigma_7 \phi \quad (\text{A.25})$$

em que:

λ_7 é a constante de decaimento dos núcleos radioativos de ^{167}Ho , e;

σ_7 é a somatória das duas seções de choque dos núcleos de ^{167}Ho para a formação do ^{168}Ho e ^{168m}Ho .

O primeiro termo da equação A.25 está relacionado com a produção de ^{167}Ho através da captura radiativa do ^{166m}Ho , o segundo termo se refere à captura do ^{166g}Ho , o terceiro é a taxa de desintegração e o quarto é a “queima” do ^{167}Ho .

$$\frac{dN_7}{dt} = N_{6m} \sigma_{6m} \phi + N_6 \sigma_6 \phi - (\lambda_7 + \sigma_7 \phi) N_7 \quad (\text{A.26})$$

$$\frac{dN_7}{dt} + (\lambda_7 + \sigma_7 \phi) N_7 = N_{6m} \sigma_{6m} \phi + N_6 \sigma_6 \phi \quad (\text{A.27})$$

O procedimento a seguir é o mesmo que já foi efetuado na resolução das equações acima, portanto será multiplicado ambos os lados por $e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}$, logo:

$$e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} \frac{dN_7}{dt} + e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} (\lambda_7 + \sigma_7 \phi) N_7 = [N_{6m} \sigma_{6m} \phi + N_6 \sigma_6 \phi] e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} \quad (\text{A.28})$$

Analogamente ao que já foi apresentado e substituindo os valores de N_{6m} e N_6 de acordo com as equações A.21 e A.23, respectivamente, temos:

$$\begin{aligned} \frac{d(e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} N_7)}{dt} = & \left\{ \left[\frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} \right. \right. \right. \\ & \left. \left. \left. - e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m})\phi t} \right] + N_{6m}^0 e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m})\phi t} \sigma_{6m} \phi \right. \right. \\ & \left. \left. + \left[\frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \phi}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} - e^{-(\lambda_6 + \sigma_6)\phi t} \right] \right] \sigma_6 \phi \right\} e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} \quad (\text{A.29}) \end{aligned}$$

Então temos:

$$\begin{aligned}
\int d(e^{(\lambda_7+\sigma_7\phi)t} N_7) = & \\
& \int \left\{ \left\{ \left[\frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \phi}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} \right. \right. \right. \\
& \left. \left. \left. - e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \right] + N_{6m}^0 e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} \right] \sigma_{6m} \phi \right. \right. \\
& \left. \left. + \left[\frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \phi}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6})\phi t} \right. \right. \right. \right. \\
& \left. \left. \left. - e^{-(\lambda_6 + \sigma_6\phi)t} \right] \right] \sigma_6 \phi \right\} e^{(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t} \Bigg\} dt \quad (\text{A.30})
\end{aligned}$$

Portanto,

$$\begin{aligned}
\int d(e^{(\lambda_7+\sigma_7\phi)t} N_7) = & \\
& \int \left\{ \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m}\phi + \sigma_{5.6}\phi - \lambda_7 - \sigma_7\phi)t} \right. \right. \\
& \left. \left. - e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi - \lambda_7 - \sigma_7\phi)t} \right] + N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi - \lambda_7 - \sigma_7\phi)t} \right. \\
& \left. + \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[e^{-(\sigma_{5.6m}\phi + \sigma_{5.6}\phi - \lambda_7 - \sigma_7\phi)t} \right. \right. \\
& \left. \left. - e^{-(\lambda_6 + \sigma_6\phi - \lambda_7 - \sigma_7\phi)t} \right] \right\} dt \quad (\text{A.31})
\end{aligned}$$

Resolvendo as integrais, temos:

$$\begin{aligned}
e^{(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} N_7 = & \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi)t}}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& + \left. \frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] + N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi \left[\frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] \\
& + \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi)t}}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& \left. + \frac{e^{-(\lambda_6 + \sigma_6 \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_6 + \sigma_6 \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] + K_3 \quad (\text{A.32})
\end{aligned}$$

Então,

$$\begin{aligned}
N_7 = & \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi)t}}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& + \left. \frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi)t}}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] + N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi \left[\frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi)t}}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] \\
& + \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi)t}}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& \left. + \frac{e^{-(\lambda_6 + \sigma_6 \phi)t}}{\lambda_6 + \sigma_6 \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] + K_3 e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t} \quad (\text{A.33})
\end{aligned}$$

Quando $t = 0 \Rightarrow N_7 = 0$, portanto:

$$\begin{aligned}
K_3 = & \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[\frac{1}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& - \left. \frac{1}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] + N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi \left[\frac{1}{\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] \\
& + \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[\frac{1}{\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right. \\
& \left. - \frac{1}{\lambda_6 + \sigma_6 \phi - \lambda_7 - \sigma_7 \phi} \right] \quad (\text{A.34})
\end{aligned}$$

Substituindo K_3 na equação (A.34),

$$\begin{aligned}
N_7(t) = & \frac{N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m}) \phi} \left[\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}}{-\lambda_7 + (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_7) \phi} \right. \\
& + \left. \frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_{6m} - \lambda_7 + (\sigma_{6m} - \sigma_7) \phi} \right] + N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi \left[\frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m} \phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_{6m} - \lambda_7 + (\sigma_{6m} - \sigma_7) \phi} \right] \\
& + \frac{N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6) \phi} \left[\frac{e^{-(\sigma_{5.6m} \phi + \sigma_{5.6} \phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}}{-\lambda_7 + (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_7) \phi} \right. \\
& \left. + \frac{e^{-(\lambda_6 + \sigma_6 \phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7 \phi)t}}{\lambda_6 - \lambda_7 + (\sigma_6 - \sigma_7) \phi} \right] \quad (\text{A.35})
\end{aligned}$$

Com isso, conclui-se que a atividade do ^{167}Ho após a ativação pode ser calculada por meio da seguinte equação:

$$\begin{aligned}
A_7(t) = & \frac{\lambda_7 N_5^0 \sigma_{5.6m} \sigma_{6m} \phi^2}{\lambda_{6m} - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_{6m})\phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m}\phi + \sigma_{5.6}\phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t}}{-\lambda_7 + (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_7)\phi} \right. \\
& + \left. \frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t}}{\lambda_{6m} - \lambda_7 + (\sigma_{6m} - \sigma_7)\phi} \right] + \lambda_7 N_{6m}^0 \sigma_{6m} \phi \left[\frac{e^{-(\lambda_{6m} + \sigma_{6m}\phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t}}{\lambda_{6m} - \lambda_7 + (\sigma_{6m} - \sigma_7)\phi} \right] \\
& + \frac{\lambda_7 N_5^0 \sigma_{5.6} \sigma_6 \phi^2}{\lambda_6 - (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_6)\phi} \left[-\frac{e^{-(\sigma_{5.6m}\phi + \sigma_{5.6}\phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t}}{-\lambda_7 + (\sigma_{5.6m} + \sigma_{5.6} - \sigma_7)\phi} \right. \\
& \left. + \frac{e^{-(\lambda_6 + \sigma_6\phi)t} - e^{-(\lambda_7 + \sigma_7\phi)t}}{\lambda_6 - \lambda_7 + (\sigma_6 - \sigma_7)\phi} \right] \quad (\text{A.36})
\end{aligned}$$

APÊNDICE B – PROGRAMAS UTILIZADOS NESSE TRABALHO

B.1 ALPINO V.3

O programa ALPINO versão 3^[42] é um programa desenvolvido em linguagem *Fortran* pelo LMN. Este programa foi utilizado neste trabalho para as suas duas funções principais, cálculo de atividade e cálculo da eficiência em medidas realizadas no HPGe. Os cálculos do programa são realizados com base na equação 4.14. Para o cálculo da atividade é necessário conhecer a eficiência do detector. Para as determinação da eficiência é preciso de fontes com atividade conhecida.

A execução do programa está associada a um arquivo contendo um espectro gama que permite diferentes extensões referentes a diferentes placas de aquisição multicanal. Além disso é necessário a preencher um arquivo com alguns parâmetros de entrada, sendo que alguns deles dão a possibilidade ao usuário de escolha do que é de seu interesse determinar, como a aplicação da correção de tempo morto com a utilização de um pulso de teste ou a subtração (ou não) das contagens da radiação de fundo, por exemplo.

A diferença da versão 3 para as outras versões deste programa é o modo como se calcula o *background* da fonte. Na versão utilizada neste trabalho o *background* é do tipo degrau e é calculado por duas funções de segundo grau.

B.2 NUCSUM8

O programa NUCSUM versão 8^[46] é um programa desenvolvido em linguagem *Fortran* pelo LMN para cálculo do efeito soma em cascata. Nesta versão foi incluída o cálculo matricial.

O código do programa para o cálculo do efeito soma em cascata tem como o base o trabalho sobre soma em coincidência em espectroscopia gama de Thomas M.SEMKOW et. al^[58].

Este programa foi utilizado para os cálculos de correção do efeito soma em cascata para as medidas de espectroscopia gama realizadas nos detectores de HPGe.

B.3 LOGFIT

O programa *LOGFIT*^[44] é um programa de ajuste de dados desenvolvido em linguagem *Fortran* pelo LMN. Nele se insere os dados que se deseja ajustar com as respectivas incertezas envolvidas. Declara-se a quantidade de incertezas, o grau do polinômio que se quer ajustar a esses dados e os pontos de interesse para interpolação.

Com as informações corretamente inseridas, o programa faz o ajuste da função desejada em log-log pelo *Método dos Mínimos Quadrados* com Matriz de Covariância.

Este programa foi utilizado para o ajuste da curva de eficiência dos detectores de HPGe utilizados neste trabalho. Os valores das eficiência, energia e as incertezas relacionadas foram extraídos do resultado do programa ALPINO V.3^[42], após serem corrigidos pelo fatores de soma em cascata, obtidos pelo programa NUCSUM^[46].

B.4 LINFIT

O programa *LINFIT*^[47] é um programa de ajuste de dados desenvolvido em linguagem *Fortran* pelo LMN. Nele se insere os dados que se deseja ajustar com as respectivas incertezas envolvidas. Declara-se a quantidade de incertezas, o grau do polinômio que se quer ajustar a esses dados e os pontos de interesse para interpolação.

Com as informações corretamente inseridas, o programa faz o ajuste linear pelo *Método dos Mínimos Quadrados* com Matriz de Covariância.

Este programa foi utilizado para se determinar a média das medidas de intensidade gama para a energia 346 keV do ¹⁶⁷Ho e sua respectiva incerteza, levando-se em consideração as suas correlações.

B.5 SCTAC68V

O SCTAC versão 6.8V^[36] é um programa desenvolvido em linguagem *Fortran* pelo LMN para processamento de dados digitalizados pelo sistema digital. Esses dados correspondem a altura de pulso e seu instante de ocorrência. Nele é possível: estabelecer um nível de discriminação; definir janelas para espectro gama e com isso determinar os pulsos em coincidência; estipular um tempo morto, e; definir um tempo de resolução no processamento, pós coleta de dados, para o cálculo da atividade.

Foi utilizado este programa para o processamento dos dados obtidos no Sistema I.

B.6 MATSSF

O MATSSF (*Material Attenuation Self Shielding Factor*) é um programa desenvolvido pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) que tem a função de ajudar o usuário a calcular a densidade do elemento, a densidade do isótopo e o fator de auto-blindagem, a partir da introdução da composição química dos componentes, a fração em peso na mistura, a massa e as dimensões da amostra^[26].

Os fatores de correção de auto-blindagem para nêutrons térmicos e nêutrons epitérmicos foram calculados com o auxílio deste programa.

B.7 MCNP6

O MCNP (*Monte Carlo N-Particle*) é um código usado para cálculo de transporte de nêutrons, fótons, elétrons ou uma combinação destes e foi desenvolvido pelo *Los Alamos National Laboratory* (LANL)^[59].

Neste trabalho o programa foi utilizado para simular a interação da radiação γ com o detector de HPGe, passando pelo absorvedor de alumínio e a partir disso determinar a eficiência de detecção.

Para realizar a simulação é necessário inserir informações sobre o experimento como o tipo de radiação, a energia e especificar toda a geometria da simulação com todos os materiais envolvidos dos absorvedores, blindagem e detector.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações.
