



PADRONIZAÇÃO DO  $^{152}\text{Eu}$  PELO MÉTODO PICO-SOMA PRECEDIDO DA  
DEDUÇÃO DE EXPRESSÕES TEÓRICAS PARA AS TAXAS DE CONTAGEM

Alfredo Lopes Ferreira Filho

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes  
José Ubiratan Delgado

Rio de Janeiro  
Novembro de 2018

PADRONIZAÇÃO DO  $^{152}\text{Eu}$  PELO MÉTODO PICO-SOMA PRECEDIDO DA  
DEDUÇÃO DE EXPRESSÕES TEÓRICAS PARA AS TAXAS DE CONTAGEM

Alfredo Lopes Ferreira Filho

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ  
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA  
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS  
REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM  
CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:



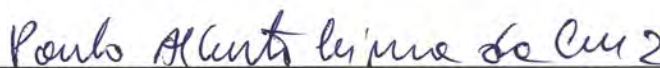
Prof. Ricardo Tadeu Lopes, D.Sc.



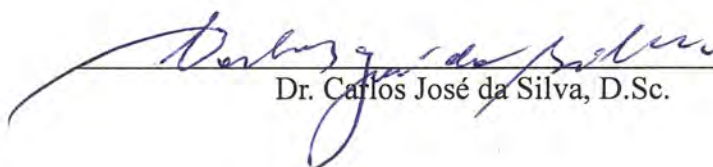
Prof. José Ubiratan Delgado, D.Sc.



Prof. Davi Ferreira de Oliveira, D.Sc.



Dr. Paulo Alberto Lima da Cruz, D.Sc.



Dr. Carlos José da Silva, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

NOVEMBRO DE 2018

Ferreira Filho, Alfredo Lopes

Padronização do  $^{152}\text{Eu}$  pelo método pico-soma precedido da dedução de expressões teóricas para as taxas de contagem / Alfredo Lopes Ferreira Filho. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2018.

XII, 73 p.: il.; 29,7 cm.

Orientador: Ricardo Tadeu Lopes

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2018.

Referências Bibliográficas: p. 68 - 73.

1. Padronização de radionuclídeos. 2. Método pico-soma. 3. Equações de taxa de contagem. I. Lopes, Ricardo Tadeu *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

Aos meus pais “in memoriam”.  
À Aurinete e aos meus filhos Diogo e Fabio.  
À minha esposa Carla.

## **Agradecimentos**

Ao *Instituto de Radioproteção e Dosimetria* pelo apoio institucional e pelo ótimo ambiente de trabalho para a realização deste trabalho.

Aos colegas do laboratório de radionuclídeos pelas discussões técnicas e pelo auxílio nas diferentes etapas da pesquisa.

Aos orientadores Ricardo Tadeu Lopes e José Ubiratan Delgado pelo apoio e estímulo durante todo o trajeto.

Aos colegas do IRD Roberto Poledna, Carlos José da Silva, Estela Maria de Oliveira, Raimundo Nonato Portela, Luiz Tauhata, Nadjara Silva da Costa, Octavio Luiz Trindade Filho, Karla Cristina de Souza Patrão, Jamir dos Santos Loureiro e Akira Iwahara pela amizade e estímulo.

Aos colegas Eduardo Vieira de Veras e Johnny de Almeida Rangel pela ajuda na preparação das amostras aqui utilizadas.

À Dra. Marie-Christine Lépy do Laboratório Nacional Henry Becquerel pelo convite e discussões durante minha estadia naquele instituto.

Aos Drs. Dušan Novković, Mirjana Đurašević e Aleksandar Kandić do *Vinča Institute of Nuclear Sciences* pelas dicas e informações gentilmente cedidas.

Ao Dr. Clovis Hazin e aos demais professores do DEN/UFPE pelos conhecimentos transmitidos.

Às funcionárias Liliane Oliveira da Rocha e Josevalda Laranjeira Noronha da secretaria do Programa de Engenharia Nuclear da COPPE pelo suporte administrativo.

Ao gerente do Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos, Dr. Paulo Alberto Lima da Cruz, e a Antônio Eduardo de Oliveira pelo apoio e estímulo.

Aos colegas Ronaldo Lins da Silva e Régio dos Santos Gomes pelo imprescindível apoio na realização deste trabalho.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D. Sc.)

PADRONIZAÇÃO DO  $^{152}\text{Eu}$  PELO MÉTODO PICO-SOMA PRECEDIDO DA DEDUÇÃO DE EXPRESSÕES TEÓRICAS PARA AS TAXAS DE CONTAGEM

Alfredo Lopes Ferreira Filho

Novembro/2018

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Programa: Engenharia Nuclear

O objetivo deste trabalho é o desenvolvimento, na área de metrologia de radionuclídeos, de uma técnica de medição primária da grandeza atividade por unidade de massa com uma abordagem teórico-experimental do método de coincidência pico-soma que permita a padronização direta do radionuclídeo de decaimento complexo  $^{152}\text{Eu}$ , no qual a cascata de desexcitação do núcleo ocorre simultaneamente com a cascata de desexcitação da camada atômica. O método de coincidência pico-soma, uma técnica de medição absoluta que usa contagem de coincidências e espectrometria de fótons com um único detector de germânio de alta resolução, foi aplicado à padronização da atividade de fontes de  $^{152}\text{Eu}$ . O ramo de decaimento utilizado foi o do  $^{152}\text{Sm}$ , uma vez que é quase inteiramente por captura eletrônica e exibe raios X com uma alta probabilidade de coincidência com os raios gama de 121,8 keV, como evidenciado pela técnica da matriz utilizada para esquemas de decaimento complexos, um método para deduzir expressões teóricas prevendo as taxas de contagem de picos do espectro energético de fótons, conhecidas como equações de taxa de contagem, que descrevem as somas por coincidência de raios gama e X. O resultado foi comparado com a calibração realizada por câmara de ionização rastreável ao BIPM. Os resultados apresentaram valores de incerteza de 0,50% ( $k = 1$ ).

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

<sup>152</sup>Eu STANDARDIZATION BY THE SUM-PEAK METHOD PRECEDED OF THE DEDUCTION OF THEORETICAL EXPRESSIONS FOR THE COUNTING RATES

Alfredo Lopes Ferreira Filho

November/2018

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Department: Nuclear Engineering

The objective of this work is the development, in the field of radionuclide metrology, of a primary measurement technique of the quantity activity per mass unit, by a theoretical-experimental approach of the Sum-Peak Coincidence Method which allows direct standardization of the complex decay radionuclide <sup>152</sup>Eu, in which the de-excitation cascade nucleus occurs simultaneously with the cascade de-excitation of the atomic layer. The Sum-peak Coincidence Method, an absolute measurement technique that uses coincidence counting and  $\gamma$ -ray spectrometry, was applied to activity standardization of <sup>152</sup>Eu sources. The decay branch used was that of <sup>152</sup>Sm, as it is almost entirely electron capture and exhibits X-rays with a high probability of coincidence with the 121.8 keV gamma rays, as evidenced by the matrix technique used for complex decay schemes, a method for deriving counting rate equations describing coincidence summing of gamma and X-rays. The result was compared with the calibration performed by ionization chamber traceable to BIPM. The results presented uncertainty values of 0.50 % (k = 1).

# SUMÁRIO

LISTA DE FIGURAS .....	ix
LISTA DE TABELAS .....	xii
1. INTRODUÇÃO.....	1
1.1 Motivação e escopo do trabalho .....	5
1.2 Organização do trabalho .....	6
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	8
2.1 O método pico-soma.....	10
2.2 Análise teórica do espectro .....	12
3. METODOLOGIA .....	17
3.1 Escolha do ramo de decaimento e dos picos .....	17
3.1.1 Dedução das equações de taxa de contagem de pico descrevendo as coincidências-soma de gama e raios X .....	22
3.1.2 Expondo as trajetórias e suas probabilidades .....	23
3.1.3 Enfoque teórico analítico para a soma-coincidência de fótons do <sup>152</sup> Eu usando um formalismo matricial .....	29
3.1.4 Matriz das Trajetórias de Decaimento .....	29
3.1.5 Matriz de probabilidades de transição.....	40
3.1.6 Consequências no detector resultantes das rotas de decaimento .....	44
3.1.7 Expressões teóricas de taxa de contagem.....	48
3.1.8 Recapitulação do método DMM .....	50
3.1.9 Escolha dos picos para a aplicação do método pico-soma.....	51
3.2 Detalhes experimentais .....	55
3.3 Equação do Método .....	59
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	61
5. CONCLUSÕES .....	65
APÊNDICE .....	66
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	68



## LISTA DE FIGURAS

<b>Figura 1:</b>	$^{152}\text{Eu}$ , esquema de decaimento simplificado ( $I \geq 1\%$ ).....	<b>5</b>
<b>Figura 2:</b>	Esquema de decaimento modificado do $^{152}\text{Eu}$ .....	<b>17</b>
<b>Figura 3:</b>	Visão geral do ramo do $^{152}\text{Sm}$ no esquema de decaimento do $^{152}\text{Eu}$ .....	<b>20</b>
<b>Figura 4:</b>	Visão geral de um espectro do $^{152}\text{Eu}$ .....	<b>21</b>
<b>Figura 5:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 2 passos. ....	<b>23</b>
<b>Figura 6:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 3 passos. ....	<b>24</b>
<b>Figura 7:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 4 passos. ....	<b>25</b>
<b>Figura 8:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 5 passos. ....	<b>26</b>
<b>Figura 9:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 6 passos. ....	<b>27</b>
<b>Figura 10:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 7 passos. ....	<b>28</b>
<b>Figura 11:</b>	Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do $^{152}\text{Eu}$ (nível $n = 20$ ) ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ (nível 0) em 8 passos. ....	<b>28</b>
<b>Figura 12:</b>	Matriz quadrada $X$ ( $21 \times 21$ ) ilustrando as possibilidades de transição entre níveis no esquema de decaimento por captura eletrônica do $^{152}\text{Eu}$ para o $^{152}\text{Sm}$ .....	<b>31</b>
<b>Figura 13:</b>	Representação parcial da matriz $21 \times 21$ , $X^2$ (quadrado de $X$ calculado pelo programa <i>Wolfram Mathematica</i> ), permitindo a visualização do elemento $[X^2]_{20,0}$ que expressa a transição do $^{152}\text{Eu}$ para o estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ em dois passos.....	<b>31</b>

<b>Figura 14:</b> Representação da matriz 21x21, $X^8$ (oitava potência de X), permitindo a visualização do elemento $[X^8]_{20,0}$ que expressa a transição do $^{152}\text{Eu}$ para o estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ em oito passos.....	<b>36</b>
<b>Figura 15:</b> Consequências resultantes (no detector) de uma rota de decaimento: probabilidades de detecção (energias depositadas no detector). Transições $n \rightarrow i$ podem ser seguidas por um de três eventos: por detecção de $K_\alpha$ , $K_\beta$ ou sem qualquer detecção. Transições de $i \rightarrow j$ ( $j < i$ ) podem ser seguidas por quatro eventos: a detecção dos fótons $K_\alpha$ , $K_\beta$ , $\gamma$ ou pela ausência de detecção. Estas possibilidades são combinadas criando, neste caso de uma rota de dois passos, $3 \times 4 = 12$ resultantes ou desfechos. As probabilidades correspondentes devem ser multiplicadas, e as energias relacionadas devem ser somadas, usando os operadores M e S, respectivamente. ....	<b>47</b>
<b>Figura 16:</b> Os produtos das probabilidades de detecção $a_{n-i}$ , $b_{n-i}$ e $q_{n-i}$ pelas probabilidades de detecção $a_{i-j}$ , $b_{i-j}$ , $\gamma_{i-j}$ e $q_{i-j}$ para $i > j$ correspondem distintas energias depositadas no detector, como $K_\alpha$ ( $E_{K\alpha}$ ), $K_\beta$ ( $E_{K\beta}$ ), $E\gamma_{i-0}$ ( $E\gamma_{i,j}$ ) e 0, ou somas delas. Note-se que a mesma energia depositada no detector pode ser consequência resultante de diferentes combinações de probabilidades de deposição. Neste exemplo, com transições ao estado fundamental por uma rota ( $n \rightarrow i \rightarrow 0$ ) de dois passos (resultando 12 probabilidades de detecção), em três casos, combinações distintas correspondem a uma mesma energia, resultando ao cabo somente 9 energias distintas. ....	<b>47</b>
<b>Figura 17:</b> Primeira parte do espectro de energia do $^{152}\text{Eu}$ observado com um detector de HPGe .....	<b>51</b>
<b>Figura 18:</b> Espectro de energia do $^{152}\text{Eu}$ de 120 a 340 keV .....	<b>52</b>
<b>Figura 19:</b> Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes (adaptado de DE OLIVEIRA, 2012 [30]) .....	<b>56</b>
<b>Figura 20:</b> Balança utilizada na confecção de fontes (Mettler e Toledo) .....	<b>56</b>
<b>Figura 21:</b> Fonte puntiforme para padronização absoluta.....	<b>57</b>
<b>Figura 22:</b> Detector de HPGe tipo planar. ....	<b>57</b>
<b>Figura 23:</b> Blindagem associada aos sistemas de detecção.....	<b>58</b>
<b>Figura 24:</b> Pré-amplificador sensível à carga.....	<b>58</b>

<b>Figura 25:</b> Dispositivo Divisor de Tensão acoplado. ....	<b>59</b>
<b>Figura 26:</b> Espectro no COLEGRAM mostrando, a título de ilustração, os picos correspondentes aos raios X, $K_{\alpha}$ e $K_{\beta}$ (como um zoom dos picos 1 e 3 da Figura 17). ....	<b>61</b>
<b>Figura 27:</b> Espectro no COLEGRAM detalhando os picos-soma dos raios X, $K_{\alpha}$ e $K_{\beta}$ (como um zoom dos picos 5, 6 e 7 da Figura 17). ....	<b>61</b>
<b>Figura 28:</b> Espectro no COLEGRAM mostrando o pico dos raios $\gamma$ de 121,8 keV e os picos-soma dos fótons X e $\gamma$ (como um zoom dos picos 8, 9 e 10 da Figura 18). ....	<b>62</b>

## LISTA DE TABELAS

<b>Tabela 1:</b> Dados nucleares do $^{152}\text{Eu}$ para captura eletrônica .....	<b>18</b>
<b>Tabela 2:</b> Dados nucleares para transições gama.....	<b>19</b>
<b>Tabela 3:</b> Dados atômicos do Európio .....	<b>20</b>
<b>Tabela 4:</b> Número de rotas de decaimento e respectivas probabilidades para a transição do $^{152}\text{Eu}$ ao estado fundamental do $^{152}\text{Sm}$ em diferentes passos .....	<b>28</b>
<b>Tabela 5:</b> Número de rotas de decaimento com certo número de passos, suas probabilidades e número de resultantes em termos de detecção. ....	<b>44</b>
<b>Tabela 6:</b> A probabilidade de detecção (ou de não detecção) dos fótons indicados determina uma lista de 160 energias resultantes (em keV). ....	<b>49</b>
<b>Tabela 7:</b> Resultados de atividades .....	<b>64</b>
<b>Tabela 8:</b> Componentes de incerteza do $^{152}\text{Eu}$ no método de coincidência pico-soma .	<b>64</b>
<b>Tabela 9:</b> Comparação das atividades do $^{152}\text{Eu}$ .....	<b>64</b>

# 1. INTRODUÇÃO

A metrologia de radionuclídeos é uma ciência voltada para a medição e análise de parâmetros nucleares (MANN *et al.*, 1991) [1]. Dentre estes parâmetros, um dos que apresenta maior relevância e importância em se tratando do processo de padronização de uma amostra radioativa é a grandeza atividade, expressão de sua taxa de desintegração.

O Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI/IRD/CNEN) possui diversificados sistemas e emprega e procura desenvolver diferentes métodos diretos para a padronização absoluta de soluções de radionuclídeos, todas fornecendo rastreabilidade em unidades SI ao *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM). Um dos sistemas amplamente utilizados é o da espectrometria gama com detectores de germânio.

Detectores de germânio por sua alta resolução, relativamente boa eficiência e uma faixa de sensibilidade de vários keV a vários MeV são amplamente utilizados em espectrometria de raios gama. Entretanto, o efeito soma por coincidência deve ser levado em conta, em particular, a uma pequena distância fonte-detector. Correções devido às soma-coincidências são normalmente necessárias em medições de alta precisão em nível metrológico, visando à determinação da atividade de radionuclídeos e medições de intensidade de emissão de fótons.

A soma por coincidência ocorre quando dois ou mais fótons em cascata são emitidos desde o mesmo núcleo e detectados dentro do tempo de resolução de um espectrômetro. Os tempos de vida de níveis nucleares para transições  $\gamma$  são, em regra, muito mais curtos do que o tempo de coleta de cargas nos detectores de germânio.

Então, em uma dada desintegração, quando dois fótons, temporalmente coincidentes, interagem com um detector, cada um depositando toda sua energia, a resposta do detector é proporcional à energia total depositada. Forma-se um pulso composto indistinguível daquele devido a um só evento. A magnitude deste efeito depende do esquema de decaimento do radionuclídeo, da eficiência do detector e da geometria de medição. O fenômeno também conhecido como soma por coincidência verdadeira (*true coincidence summing*, na expressão em inglês) ou soma em cascata (*cascade summing*) não deve ser confundido com empilhamento de pulsos (*pile-up*) devido a altas taxas de contagem. Diferentemente dessas somas aleatórias que

dependem da taxa de contagem, as chamadas coincidências verdadeiras estão intrinsecamente relacionadas à geometria. A incidência desses efeitos é maior quando a fonte está apoiada sobre ou próxima ao topo do detector.

Em geral, três tipos de efeitos resultam das soma-coincidências verdadeiras. Se um dado fóton deposita toda sua energia no detector e outro fóton coincidente deposita apenas parte de sua energia, teremos uma "perda no pico" (*peak loss*) correspondente à energia do primeiro fóton, geralmente referido como efeito "*summing-out*" (de soma para fora do pico). Alternativamente, no caso do efeito "*summing-in*" (de soma para dentro de um novo pico), se dois raios coincidentes depositarem suas energias completas no detector (absorção total), um "pico-soma" aparece no espectro. Cada contagem no pico soma-coincidência implica a perda de uma contagem em cada um dos picos gama contribuintes (MCCALLUM e COOTE, 1975) [2]. O terceiro fenômeno ocorre quando os fótons coincidentes depositam apenas parte de suas energias no detector, o que contribui apenas para o "*background*", não resultando acréscimos nem nas intensidades de pico nem nas eficiências.

Outras radiações podem estar em verdadeira coincidência (efeito "*summing-in*") com os raios  $\gamma$ . Se a transição beta ou gama é acompanhada pela formação de vacâncias nos níveis atômicos através de captura de elétrons ou de conversão interna, respectivamente, também podem ocorrer efeitos de soma-coincidência com os raios X resultantes desses processos. De fato, como na emissão de elétrons de conversão interna, o processo de decaimento por captura de elétrons também resulta na emissão de quantidades apreciáveis de raios X.

Nesse contexto, é importante fazer um parêntesis para lembrar que a emissão de elétrons Auger (monoenergéticos) pode reduzir sensivelmente a abundância dos raios X que normalmente se espera medir nesses processos de decaimento. Tal emissão compete com a emissão de raios X, e pode acompanhar qualquer processo de decaimento de radionuclídeos que resulte na produção de raios X. Quando vacâncias são deixadas em camadas eletrônicas (K, L, M...) elas podem ser preenchidas por elétrons atômicos a partir de níveis de energia mais elevados. No processo de queda para uma camada de energia inferior, para preencher a vacância, parte da energia do elétron é dissipada como um fóton de radiação X. Teremos então ou a emissão do fóton para fora do átomo ou sua colisão com um elétron atômico, resultando na ejeção do elétron conhecido como elétron Auger. Este pode ser considerado como o análogo atômico do elétron (monoenergético) de conversão interna, cuja emissão (*internal-conversion electron emission*)

compete com a emissão de radiação gama como um modo alternativo de desexcitação nuclear. Os processos de desexcitação radiativa e não radiativa são sempre competitivos (L'ANNUNZIATA, 2012) [3].

Os picos devidos à soma por coincidência de raios ( $X + X$ ), ( $X + \gamma$ ) e ( $\gamma + \gamma$ ) podem complicar o espectro obtido pelo sistema de detecção e alterar significativamente as taxas de contagem dos fotopicos ou picos de absorção total ou de energia plena (*full energy peak* ou *FEP*, na sigla em inglês).

No entanto, o método de coincidência pico-soma, precisamente, aproveita o efeito soma (*summing-in effect*), não sendo necessário calcular, como normalmente, qualquer fator de correção por coincidências, uma conhecida fonte de incerteza nas medições de atividade por espectrometria gama.

O poder de percepção do idealizador do método permitiu transformar uma fonte de erros recorrentes em espectrometria, em uma metodologia inovadora de padronização de radionuclídeos emissores de radiação eletromagnética (GILMORE, 1995) [4].

Contagens por coincidência propriamente dita têm sido usadas como um método absoluto configurando o sistema de detecção com um par de detectores. Eles registram as radiações  $\beta$ - $\gamma$ ,  $\gamma$ - $\gamma$ ,  $X$ -( $X, \gamma$ ) etc. em coincidência, e a desconhecida atividade da fonte é determinada usando as contagens em coincidência ou anticoincidência entre os sinais dos detectores (NCRP, 1985) [5].

O método pico-soma, uma técnica de medição absoluta que utiliza contagens por coincidência e espectrometria de fótons  $X$  e gama, é baseado no mesmo princípio, mas requer apenas um único detector e a eletrônica espectroscópica associada, enquanto o método de coincidência requer dois ou mais detectores com módulos de tempo (POMMÉ, 2007) [6].

O método permite medições de atividade absoluta daqueles radionuclídeos que emitem pelo menos dois fótons coincidentes sem transições radiativas diretas para o estado fundamental do núcleo-filho. O mérito do método pico-soma reside na simplicidade da técnica de medição e do sistema de detecção. Este método também tem uma vantagem quando comparado com o método relativo de medição usando espectroscopia de raios gama, frequentemente usado para determinar a radioatividade de uma fonte desconhecida. A medição relativa requer uma calibração precisa de eficiência e de energia do sistema de espectroscopia. Por isso, é influenciada pelas condições

experimentais da geometria fonte-detector, a energia dos raios  $\gamma$ , e a radioatividade da fonte.

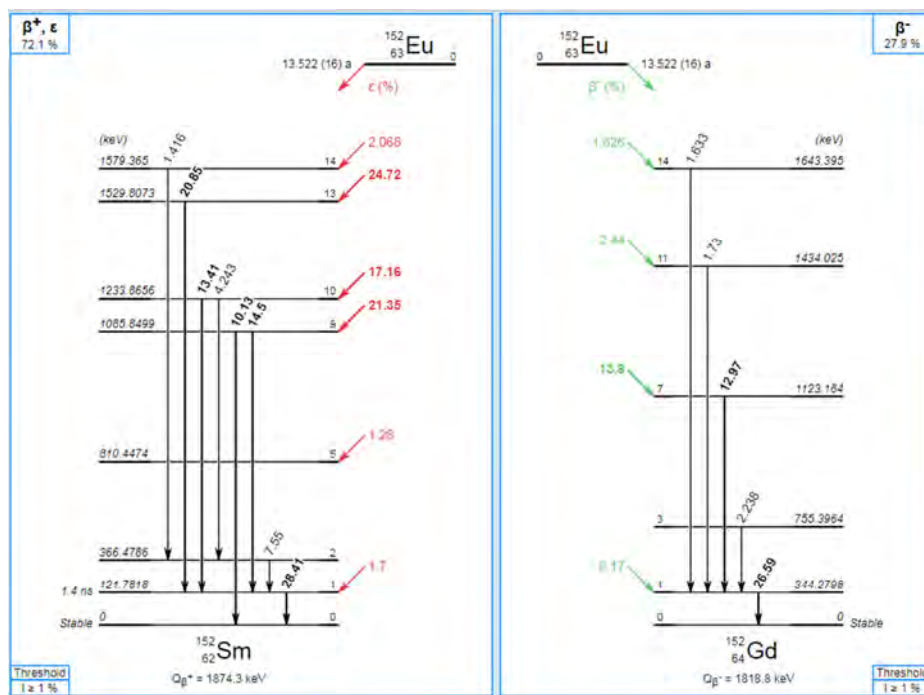
O método normalmente requer, para a determinação da atividade da fonte, o conhecimento da taxa de contagem total do espectro, bem como das taxas dos picos de absorção total dos dois fótons e da taxa de contagem do pico-soma por coincidência verdadeira (KIM *et al.*, 2003) [7]. Mais comumente, ele é aplicado a fontes puntiformes medidas em uma geometria de proximidade fonte-detector, o que melhora a estatística de contagem da área do pico-soma.

O que faz do método pico-soma um dos mais vantajosos em relação aos outros métodos de padronização absoluta é o fato de poder apresentar facilidade para sua aplicação (dependendo do radionuclídeo em questão), além de possibilitar a obtenção de baixos valores para os componentes da incerteza tipo A e principalmente as do tipo B (DE OLIVEIRA *et al.*, 2012) [8]. Em metrologia, uma das maiores preocupações quando se objetiva estimar o valor de uma grandeza é a de obter, não apenas uma maior exatidão sobre o valor nominal, mas, a melhoria na precisão da medida (incerteza) que muitas das vezes irá expressar o quão consistente é um método de calibração (INMETRO, 2012 [9]; GUM, 2003 [10]).

Neste estudo, o método de coincidência pico-soma foi aplicado para a padronização absoluta da atividade de seis fontes de  $^{152}\text{Eu}$ , usando um detector de germânio ultra puro (HPGe). O interesse particular neste radionuclídeo é explicado por seu amplo uso como fonte padrão multi-gama para uma precisa calibração em energia e eficiência de espectrômetros gama com detectores semicondutores, uma vez que, além de uma meia-vida relativamente longa, é ampla a faixa de energia dos fótons emitidos, variando de 40 a 1769 keV, o que faz deste radionuclídeo apropriado para o propósito supracitado.

Contudo, devido ao seu **esquema de decaimento muito complexo**, com dois ramos de decaimento, a determinação da atividade do  $^{152}\text{Eu}$  apresenta muitas dificuldades. Com uma meia-vida de 13,5 anos, desintegra-se em  $^{152}\text{Sm}$  por captura eletrônica (72,1 %) ou por emissão de pósitrons (0,027 %) e em  $^{152}\text{Gd}$  por emissão beta menos (27,9 %). A **Figura 1** apresenta apenas um esquema simplificado do  $^{152}\text{Eu}$ . Na verdade, o núcleo filho,  $^{152}\text{Sm}$ , tem um total de 19 níveis excitados, enquanto o  $^{152}\text{Gd}$  tem 15. O decaimento direto do núcleo pai para o estado fundamental do núcleo filho não existe (VANIN *et al.*, 2004) [11].





**Figura 1:**  $^{152}\text{Eu}$ , esquema de decaimento simplificado ( $I \geq 1\%$ ).

O decaimento de uma fonte do radionuclídeo  $^{152}\text{Eu}$  resulta em emissões de pelo menos quatro fótons KX (dois para cada ramo) e 132 raios gama, o que é motivo de uma grande quantidade de soma-coincidências, mais precisamente **4.110** picos-soma em potencial (JORDANOV, 2016) [12]. A hipótese implícita é que os fótons  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  e  $\gamma$  são emitidos desde o mesmo núcleo. Fótons emitidos desde diferentes núcleos podem produzir só somas por coincidências aleatórias que podem ser reduzidas escolhendo-se uma fonte de baixa atividade.

### 1.1 Motivação e escopo do trabalho

A determinação da grandeza atividade por espectrometria de germânio é uma ajuda valiosa amplamente utilizada nas aplicações com fontes radioativas. Explorando essa técnica de **espectrometria gama** e partindo de uma abordagem analítica do espectro de fótons, ou seja, decompondo-o teoricamente em partes mais simples (partes que se tornam mais facilmente explicadas, e que uma vez entendidas tornam possível o entendimento do todo) por meio da dedução teórica de equações de taxa de contagem de seus picos, o presente trabalho discute o emprego de um método primário de medição da taxa de desintegração, quantificada pela grandeza atividade, para padronizar uma solução de  $^{152}\text{Eu}$ , em busca de resultados consistentes e que possam ser

metrologicamente rastreados visando futura participação do laboratório em uma comparação chave do BIPM.

O **objetivo** deste trabalho é, portanto, o desenvolvimento, na área de metrologia de radionuclídeos, de uma técnica de medição primária da grandeza atividade por unidade de massa, com uma abordagem teórico-experimental do método de coincidência pico-soma, que permite a padronização direta do radionuclídeo de decaimento complexo  $^{152}\text{Eu}$ , no qual a cascata de desexcitação do núcleo ocorre simultaneamente com a cascata de desexcitação da camada atômica.

Correspondendo aos resultados concretos que o presente estudo alcança, visando atingir esse objetivo geral, são os seguintes seus objetivos específicos em sequência de execução:

- a) Estudar o efeito soma por coincidência na espectrometria de raios X e gama do  $^{152}\text{Eu}$  deduzindo expressões teóricas para as taxas de contagem de picos do espectro de energia deste radionuclídeo, por meio da aplicação da teoria desenvolvida por NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13] baseada no seguimento ou rastreio de todas as rotas, trajetórias ou caminhos de decaimento de radioisótopos com esquema de decaimento complexo e suas consequências em um detector, ou seja, as energias susceptíveis de serem depositadas, associadas às correspondentes probabilidades de detecção.
- b) Estabelecer uma metodologia de padronização absoluta pelo método pico-soma para que a mesma seja, ocasionalmente, incorporada à rotina de calibração do LNMRI.
- c) Comparar resultados obtidos por diferentes métodos.

A aplicação da metodologia desenvolvida por NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13] – método de multiplicação direta de matrizes (*direct matrices multiplication- ou DMM-method*, na expressão em inglês) – visando à escolha dos picos do  $^{152}\text{Eu}$  a serem aqui utilizados para a aplicação do método de coincidência pico-soma, por seu caráter inédito, foi o destaque no trabalho já publicado na revista *Applied Radiations and Isotopes* (FERREIRA FILHO *et al.*, 2018a) [14].

## 1.2 Organização do trabalho

Depois da abordagem do problema da pesquisa feita até aqui a título de INTRODUÇÃO, nos próximos capítulos serão tratados os seguintes assuntos:

- No Capítulo 2 será apresentada uma revisão de literatura com o objetivo de mencionar o que já foi pesquisado sobre o tema, abordando os fundamentos teóricos considerados como importantes para melhor compreensão do texto e que se relacionam diretamente com a metodologia do sistema de padronização abordado.
- O Capítulo 3 visa explicar como o problema pôde ser resolvido, sendo dividido em duas partes: uma parte basicamente teórica (item 3.1), referente à escolha do ramo de decaimento e dos picos desse ramo a ter suas taxas de contagem quantificadas e a segunda parte (item 3.2), abordando a aplicação do método pico-soma propriamente dito, apresentando os procedimentos utilizados, desde a construção do *setup* de medições até a realização das medições e o cálculo para a padronização das amostras radioativas.
- No Capítulo 4 serão apresentados e discutidos os resultados obtidos e as comparações destes com as calibrações realizadas por outro sistema, com valores adotados como de referência.
- No capítulo seguinte serão apresentadas as conclusões do trabalho.

## 2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Para um bom desempenho da metrologia de radionuclídeos em geral e das medições de atividade em particular é necessário considerar os atributos mais básicos da radioatividade, como sua natureza estatística, a lei do decaimento radioativo, os tipos de radiações emitidas, suas probabilidades de emissão e outros dados nucleares conforme descrito por KNOLL (1989) [15].

Em medições relativas, a análise de um espectro e a determinação da curva de eficiência podem ser particularmente complicadas (DEBERTIN, 1988) [16]. As somas por coincidências, especialmente em uma geometria de medição próxima ao detector, requerem uma determinação precisa dos fatores de correção (DEBERTIN e SCHÖTZIG, 1979 [17]; MOREL *et al.*, 1983) [18]. No caso de fontes puntiformes de  $^{152}\text{Eu}$ , essa determinação é um tópico importante que foi apresentado em muitos estudos (RIZZO e TOMARCHIO, 2010 [19]; AGARWAL *et al.*, 2011 [20]; DELGADO *et al.*, 2006 [21]; ARNOLD e SIMA, 2004) [22]. Métodos de avaliação dos fatores de correção para somas por coincidência no caso de fontes puntiformes foram verificados por intercomparações feitas pelo Grupo de Trabalho em Espectrometria Gama (GSWG) do Comitê Internacional de Metrologia de Radionuclídeos (ICRM), (LÉPY *et al.*, 2010) [23].

Em alguns estudos NOVKOVIĆ *et al.* (2007a [13], 2007b [24], 2012a [25], 2012b [26]) descreveram o método de multiplicação de matrizes diretas (DMM), que foi verificado experimentalmente com fontes puntiformes de  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{75}\text{Se}$ . KANISCH *et al.* (2009) [27] compararam os fatores de correção para as somas por coincidência obtidos por diferentes métodos e confirmaram uma excelente concordância entre o método DMM e os fatores obtidos pelo software GESPECOR 4.2 (2011) para fontes puntiformes de  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{152}\text{Eu}$ .

Uma visão sucinta sobre os principais métodos de padronização primária de soluções radioativas para a grandeza atividade pode ser obtida em MARINGER (2010) [28] ou em diversos trabalhos de tese defendidos, sobretudo na COPPE e no IRD, nos últimos anos, tais como: DA SILVA (2008) [29], DE OLIVEIRA (2012) [30], LOUREIRO (2013) [31], CORREIA (2016) [32], DA SILVA (2017) [33] e DE ARAÚJO (2018) [34].

Métodos de coincidência têm sido usados em medições absolutas, compondo o sistema de detecção com um par de detectores. Se o decaimento é seguido pela emissão

de partículas diferentes, dois detectores com um circuito de coincidência são comumente usados para as medições. A atividade da fonte é determinada usando as contagens em coincidência ou anticoincidência entre os sinais do detector (NCRP, 1985) [5], (POMMÉ, 2007) [6], (BOBIN, 2007) [35].

A contagem de coincidências beta-gama, por exemplo, é uma técnica amplamente utilizada para a padronização de fontes radioativas devido à sua precisão e independência para um grande número de radionuclídeos. O princípio básico da contagem de coincidências pode ser descrito partindo do caso ideal de medição da atividade de um radionuclídeo com um esquema de decaimento simples consistindo de uma emissão  $\beta$  seguida imediatamente por um fóton  $\gamma$  da desexcitação do nuclídeo filho. O sistema de detecção e a eletrônica de contagem associada são compostos por dois canais distintos,  $\beta$  e  $\gamma$ , cada um sensível a um tipo de radiação. O princípio do método de coincidência vem do canal de coincidência adicional, que registra um evento de desintegração quando ele é detectado em ambos os canais  $\beta$  e  $\gamma$ .

As contagens apresentadas nos três canais serão funções das eficiências  $\epsilon_\beta$ ,  $\epsilon_\gamma$  e  $\epsilon_c$ , respectivamente (CAMPION, 1964) [36]. Para uma fonte pontual a atividade será:

$$N_\beta = N_0 * \epsilon_\beta \quad (1)$$

$$N_\gamma = N_0 * \epsilon_\gamma \quad (2)$$

$$N_c = N_0 * \epsilon_\beta * \epsilon_\gamma \quad (3)$$

Em que:

$N_\beta$ ,  $N_\gamma$ ,  $N_c$ , são as contagens registradas nos canais beta, gama, e coincidência c;

$\epsilon_\beta$ ,  $\epsilon_\gamma$  e  $\epsilon_c$ , são as eficiências de detecção beta, gama, e de coincidência c;

$N_0$ , é a atividade total;

Multiplicando (1) e (2) e dividindo por (3), temos:

$$N_0 = N_\beta * N_\gamma / N_c \quad (4)$$

A atividade  $N_0$  é calculada, portanto, utilizando-se uma expressão (4) que depende apenas das taxas de contagem nos canais  $\beta$  e  $\gamma$ ,  $N_\beta$  e  $N_\gamma$ , respectivamente, e a taxa de contagem de coincidências  $N_c$ .

As eficiências  $\beta$  e  $\gamma$  também podem ser obtidas por meio das taxas de contagem dos respectivos canais:

$$\epsilon_\beta = N_c / N_\gamma \quad (5)$$

$$\varepsilon_\gamma = N_c / N_\beta \quad (6)$$

## 2.1 O método pico-soma

O método pico-soma, uma técnica de medição absoluta que usa a contagem de coincidências e a espectrometria gama, é baseado no mesmo princípio da contagem de coincidências, mas requer apenas um detector de raios  $\gamma$ , além da eletrônica espectroscópica (HUTCHINSON *et al.*, 1973) [37].

Para radionuclídeos emitindo dois fótons em coincidência, pode ser possível, por este método, determinar a atividade da fonte e a eficiência do detector de fótons a partir de simples medições das taxas de contagem de picos de absorção total desses raios  $\gamma$  ou X, a taxa de contagem total do espectro e uma razão entre os fotopicos e a taxa de contagem do pico-soma de ambos os fótons em verdadeira coincidência (KIM *et al.*, 2003) [7], (ELDRIGE e CROWTHER, 1964) [38], (BRINKMAN *et al.*, 1963a, b, 1965) [39], [40], [41], (BRINKMAN e ATEN, 1963, 1965) [42], [43].

Dessa forma a atividade, ou taxa de desintegração, do radionuclídeo pode ser determinada diretamente do espectro de raios gama e X, sem o uso de padrões, desde que ele decaia com emissão de dois fótons em verdadeira coincidência (isto é, fótons de raios X ou gama) (L'ANNUNZIATA, 2012) [3].

O método pico-soma foi originalmente concebido para detectores de NaI(Tl) por BRINKMAN *et al.* (1963a, b,) [39], [40], (1965) [41] e BRINKMAN e ATEN (1963, 1965) [42] [43]. Pela primeira vez eles aproveitaram os eventos de verdadeira coincidência no espectro para medir a grandeza atividade utilizando um único detector. Eles mediram a atividade de fontes de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{22}\text{Na}$  e  $^{18}\text{F}$  usando um detector de NaI(Tl) tipo poço.

Deduzindo a equação fundamental do método, eles demonstraram que a atividade de um isótopo emitindo dois raios  $\gamma$  em coincidência pode ser calculada a partir das áreas de ambos os fotopicos, a área do pico-soma e uma extrapolação da taxa de contagem total (7):

$$\frac{A_1 A_2}{A_{12}} + N_T = N_0 \quad (7)$$

onde  $N_0$  é a atividade da fonte,  $N_T$  é a taxa de interações em todo o espectro,  $A_1$  e  $A_2$  são as taxas de contagem dos fotopicos e  $A_{12}$  é a taxa de contagem do pico-soma, resultante da interação simultânea das duas radiações no detector.

Muitas das limitações inicialmente atribuídas ao método se deveram ao fato de que à época de sua concepção, os sistemas de detecção possuíam limitações intrínsecas que inviabilizavam a medição dos parâmetros nucleares de maneira fidedigna (SIEGBAHN, 1965) [44].

No caso de coincidências X e gama, como o tempo de vida das vacâncias nas camadas eletrônicas do átomo é muito menor do que o tempo de vida dos estados nucleares excitados que determinam a taxa de formação daquelas vacâncias, se pode presumir com segurança que há apenas uma vacância de cada vez nas camadas atômicas e, portanto, a contribuição do decaimento dos estados de duas vacâncias pode ser negligenciada. Desta forma, as desexcitações do núcleo e das camadas atômicas podem ser tratadas como decaimentos não correlacionados.

Se um elétron de uma camada é capturado pelo núcleo, uma vacância é deixada na eletrosfera do átomo, que é rapidamente (dentro de aproximadamente  $10^{-13}$  s) preenchida por elétrons de uma camada mais externa com a emissão de energia na forma de uma sucessão de elétrons Auger e raios X. A soma do rendimento de fluorescência,  $\omega_i$  (a fração emitida pela  $i$ -ésima camada), e o rendimento de elétrons-Auger,  $a_i$ , é igual à unidade ( $\omega_i + a_i = 1$ ) (MANN *et al.*, 1991) [1].

O uso de um detector de Ge com o método pico-soma foi experimentado por MARTIN e TAYLOR (1992) [46] para medir  $^{125}\text{I}$  abordando os problemas de tempo morto e de empilhamentos de pulsos. Em outro estudo, o método pico-soma foi aplicado para a calibração absoluta de fontes de  $^{60}\text{Co}$  com atividades variando de 25 a 350 kBq (KIM *et al.*, 2003) [7].

Com a finalidade de se obter melhor estatística nos picos de coincidência verdadeira ou real, as fontes podem ser colocadas em cima do detector (praticamente com geometria  $2\pi$ ). No entanto, distâncias próximas causam maiores taxas de contagem. Portanto, dependendo da atividade da fonte medida, os eventos de empilhamento podem resultar em picos aleatórios e perdas de picos no espectro contínuo, mesmo com o dispositivo de rejeição de empilhamentos (*pile-up rejector*) ligado.

Outro método pico-soma usando NaI(Tl) foi realizado por ZAJIC (1986) [47]. O sistema de detecção foi composto por dois cristais NaI(Tl) e eletrônica de temporização, e foi operado nos modos soma, coincidência e anticoincidência. O método pico-soma usando dois cristais de NaI(Tl) já havia sido aplicado por HUTCHINSON *et al.* (1973)

[37]. No entanto, ZAJIC (1986) [47] melhorou a precisão, corrigindo os problemas de tempo morto e de empilhamentos de pulsos e coincidências aleatórias.

Desde a época da concepção original do Método de Coincidência Pico-Soma feita por BRINKMAN *et al.* (1963), um numeroso volume de publicações científicas foram e têm sido feitas por diversos laboratórios nacionais de vários países (DE ARAÚJO *et al.*, 2016) [48], (OGATA *et al.*, 2016) [49], (KIM *et al.*, 2003) [7], (CAPOGNI *et al.*, 2006) [50], (WANG *et al.*, 2001) [51], (VIDIMAR *et al.* 2008) [52].

A padronização de fontes radioativas com esquemas de decaimento complexos por meio do método pico-soma é relatada em alguns artigos (NOVKOVIĆ *et al.*, 2007<sup>a</sup>) [13], (BIKIT *et al.*, 2009) [53], (IWAHARA *et al.*, 2009) [54].

O LNMRI tem se mostrado pioneiro na publicação de trabalhos acadêmicos que fazem uso do método pico-soma para a padronização de diversos radionuclídeos totalizando um valor aproximado de 100 trabalhos publicados desde 1980. A grande maioria dos resultados obtidos para o valor da grandeza atividade é compatível quando comparados àqueles obtidos pelos métodos de padronização absoluta como o  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ , coincidência, anti-coincidência e TDCR (DE ALMEIDA *et al.*, 2007) [55], (DIAS e KOSKINAS, 1995) [56], (DA SILVA *et al.*, 2006) [57].

O número de citações nacionais e internacionais contabilizadas pelas plataformas *Scopus*, *Scielo*, entre outras, tem contribuído para a evidencição do grupo de espectrometria gama do LNMRI e o conseqüente fortalecimento do método que já conta com um bom volume de trabalhos publicados em periódicos de destaque internacional tais como: *Metrologia*, *International Journal Applied Radiation and Isotopes*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, entre outros (DE ARAÚJO *et al.*, 2015) [48], (DE ALMEIDA *et al.*, 2007) [55], (DA SILVA *et al.*, 2006) [57] e (OLIVEIRA *et al.*, 2012) [8].

## 2.2 Análise teórica do espectro

Ao considerar a possibilidade de verdadeiras coincidências, as interpretações quantitativas dos espectros podem se tornar muito complicadas, mesmo com esquemas de decaimento relativamente simples. Autores como NOVKOVIĆ *et al.*, (2007a) [13], SEMKOW *et al.*, (1990) [58] e JUTIER *et al.*, (2007) [59] apresentam diferentes meios de tratar analiticamente esquemas complexos de decaimento e os eventos possíveis de verdadeira coincidência, adaptados de acordo a diferentes propósitos.



Equações em forma de matriz para calcular taxas de contagem de picos de um espectro, na presença de efeitos soma por coincidência, foram escritas pela primeira vez por Semkow *et al.* [58]. Embora o modelo matemático apresentado fosse flexível o suficiente para acomodar alguns efeitos que acompanham as emissões de raios X, nesta abordagem a formação de picos-soma devido aos raios X não foi levada em consideração ou incluída no cálculo.

Para incluir essa contribuição, KORUN e MARTINČIČ (1993) [45] propuseram uma mudança no método da matriz de SEMKOW *et al.* (1990) [58] que consiste na introdução de níveis virtuais artificiais no esquema de decaimento para cada transição de raios X. Eles aplicaram com sucesso seu modelo ao decaimento do  $^{139}\text{Ce}$ , um núcleo cujo decaimento é seguido por emissão de raios X. O núcleo de  $^{139}\text{La}$ , o filho do  $^{139}\text{Ce}$ , tem apenas um nível excitado, de modo que é o caso mais simples de coincidência soma de raios X e gama.

A teoria também foi aplicada ao decaimento do  $^{57}\text{Co}$ , e os resultados teóricos foram confirmados por experimento. Mas esses dois radionuclídeos têm esquemas de decaimento relativamente simples. Tentativas de aplicar o mesmo formalismo matricial ao caso em que o núcleo-filho tem mais de um nível nuclear excitado não forneceram resultados aceitáveis, isto é, ocorreram algumas transições espúrias, enquanto outras, que estão fisicamente presentes, ficaram ausentes.

NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13] desenvolveram uma nova abordagem para resolver o problema, pelo menos no nível matemático. Visando a medição direta da atividade de radionuclídeos através da aplicação de equações teóricas de taxas de contagem, pela primeira vez, era apresentado um método geral para avaliação analítica do efeito soma por coincidência de raios X e gama, aplicável a qualquer radionuclídeo. Os resultados estavam de acordo com os resultados para o  $^{139}\text{Ce}$  de KORUN e MARTINČIČ (1992) [45].

Essa abordagem é baseada no formalismo matricial apenas na fase inicial, a que permite a identificação de todos os caminhos de decaimento. A análise posterior é baseada na identificação das possíveis consequências resultantes desses caminhos no detector (*path outcomes*, na expressão em inglês), ou seja, as energias passíveis de serem depositadas e suas respectivas probabilidades.

Usando um formalismo matemático aparentemente complicado, que inclui produtos diretos e somas diretas de algumas matrizes, cujos elementos não são sempre números, mas listas de probabilidades de detecção (expressas de forma literal) e

energias adequadamente organizadas, NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13], solucionaram de forma criativa as dificuldades presentes na abordagem de KORUN e MARTINČIČ (1992) [45]. Considerando todos os picos que podem surgir devido a coincidências verdadeiras, os autores desenvolveram um método teórico, posteriormente denominado método de Multiplicação de Matrizes Diretas – DMM (NOVKOVIĆ *et al.*, 2012b) [24], para a obtenção de equações ou expressões teóricas para as taxas de contagem de todos os picos (fotopicos e picos-soma) que aparecem no espectro de qualquer radionuclídeo, bem como para a taxa de contagem total. Uma descrição completa e minuciosa dos procedimentos e sua aplicação ao  $^{133}\text{Ba}$  foi apresentada e discutida no Congresso Regional IRPA recentemente realizado em Havana (FERREIRA FILHO, 2018b) [60].

O método DMM, baseado no formalismo matricial e na resolução numérica do sistema de equações de taxa de contagem, permite: (1) a identificação de todas as possíveis rotas (ou caminhos) de decaimento, (2) a determinação de todos os possíveis desfechos ou consequências resultantes dessas rotas no detector, (3) o cálculo da probabilidade de consequências específicas no detector e sua correspondente energia depositada, (4) a determinação de expressões teóricas para as taxas de contagem de cada pico (excluindo picos de escape) e também para a taxa de contagem total, de importância crucial para uma medição direta da atividade.

Se as expressões teóricas para as taxas de contagem forem igualadas a valores experimentais, um sistema de equações não lineares é obtido. Neste sistema, os valores desconhecidos (incógnitas do sistema) são as eficiências de detecção, de pico e total, e a atividade da fonte. Os coeficientes nessas incógnitas são constantes que caracterizam o radionuclídeo medido e podem ser encontrados na literatura (constantes do esquema de decaimento).

No caso de um radionuclídeo com o mais simples esquema de decaimento, como o  $^{139}\text{Ce}$ , a equação explícita para a atividade poderia ser derivada das expressões de taxa de contagem. Esta fórmula contém apenas taxas de contagem para os picos simples e os picos-soma e também para a taxa de contagem total, e permite a medição absoluta da atividade desses radionuclídeos.

Nos espectros do  $^{57}\text{Co}$  e do  $^{133}\text{Ba}$  obtidos experimentalmente, o número de picos é maior que o número de incógnitas. Um sistema de equações pode ser usado para determinar as eficiências de detecção (total e de pico) e também para o cálculo da atividade da fonte.

Métodos analíticos e de Monte Carlo para a avaliação da incerteza no cálculo da atividade no caso de registro de apenas um espectro são dados em detalhe por ARNOLD e SIMA (2006) [61]. Em outro trabalho, foi apresentado o procedimento de análise da incerteza para uma sequência de espectros registrados sucessivamente, permitindo a determinação dos coeficientes de correlação entre certas taxas de contagem de pico. Os dados nucleares e atômicos são tomados da literatura e a influência de suas incertezas só pôde ser determinada usando simulação de Monte Carlo.

Por outro lado, se o detector já estiver calibrado, as eficiências de detecção podem ser consideradas como grandezas conhecidas. Assim, as taxas de contagem de fotopicos e picos-soma podem ser calculadas, usando fórmulas teóricas, e comparadas com valores experimentais. Os cálculos realizados com a aplicação do método DMM são válidos apenas no caso de fontes puntiformes (ou quase) e se os efeitos de correlação angular forem desprezíveis.

O método DMM foi aplicado com sucesso ao  $^{133}\text{Ba}$  (NOVKOVIĆ *et al.*, 2007b e 2009) [24] [62], e ao  $^{75}\text{Se}$  (NOVKOVIĆ *et al.*, 2012a) [25], além do  $^{139}\text{Ce}$  e do  $^{57}\text{Co}$  (NOVKOVIĆ *et al.*, 2007a) [13]. BIKIT *et al.* (2009) [53] estenderam essa abordagem corrigindo-a para contribuição de empilhamento e perdas de picos. Introduzindo um procedimento para avaliação da incerteza total, o método DMM foi atualizado para aplicação na medição direta da atividade do  $^{57}\text{Co}$  (NOVKOVIĆ *et al.*, 2012b) [26]. O método DMM foi comparado com outros métodos por KANISCH *et al.* (2009) [27] para fontes de  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ , indicando uma muito boa concordância.

ARNOLD e SIMA, 2006 [61] também consideraram efeitos soma para o  $^{133}\text{Ba}$  usando simulações de Monte Carlo. Com o *software* GESPECOR (*Germanium Spectroscopy Correction Factors*), eles calcularam o fator de correção para soma por coincidência para todos os picos esperados no espectro (ARNOLD e SIMA, 2004) [22].

Estudos de viabilidade do método DMM para uso de rotina em laboratórios mostram que o método é apropriado para medições diretas de alguns radionuclídeos, juntamente com métodos já consagrados (RATEL e MICHOTTE, 2003 [63]; RATEL *et al.*, 2005 [64]; MICHOTTE *et al.*, 2009 [65]).

NADDERD *et al.* [66] apresentaram uma variação do método anterior para obter estas equações de taxa de contagem. Este enfoque também gera expressões teóricas para todas as taxas de contagem de picos de absorção total ou completa (fotopicos e picos-soma) no espectro, assim como para a taxa de contagem total. Permite também, de maneira simples, estimar a contribuição dos efeitos soma por coincidência para

radionuclídeos de esquemas complexos de decaimento, tal como o do  $^{152}\text{Eu}$  (JORDANOV *et al.*, 2016) [12].

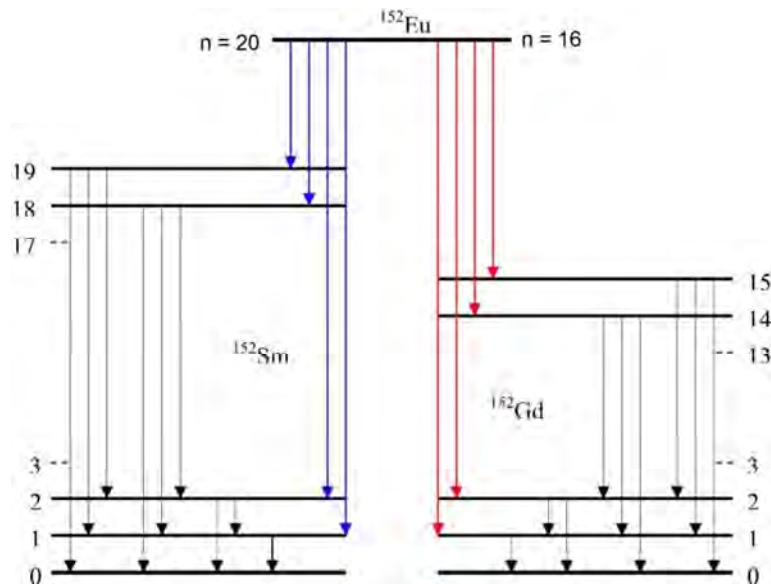
Analisando o complexo esquema de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$  (FERREIRA FILHO *et al.*, 2018c) [67] identificaram todos os caminhos ou trajetórias de decaimento e suas probabilidades. Foram 74 caminhos para o estado fundamental do  $^{152}\text{Gd}$  e 285 para o do  $^{152}\text{Sm}$ , totalizando 359 cascatas. A probabilidade de seguir cada caminho, vista como um produto de probabilidades de transição, foi calculada por uma planilha Excel.

### 3. METODOLOGIA

Visando explicar como o problema pôde ser resolvido, o presente capítulo é subdividido em duas partes: a primeira, (item 3.1) uma parte basicamente teórica referente à escolha do ramo de decaimento e dos picos desse ramo a ter suas taxas de contagem quantificadas e a segunda parte (item 3.2), abordando a aplicação do método pico-soma propriamente dito.

#### 3.1 Escolha do ramo de decaimento e dos picos

As características principais do complexo esquema de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$  se mostram na **Figura 2** (JORDANOV *et al.*, 2016) [12] com os 19 níveis excitados do  $^{152}\text{Sm}$  e os 15 do  $^{152}\text{Gd}$ . Nesta figura, por conveniência da abordagem matricial que vai ser empregada, o estado fundamental do núcleo pai, rotulado com a letra  $n$ , é apresentado como se fosse mais um nível excitado de um dos núcleos filhos (sendo  $n=20$  para o ramo do  $^{152}\text{Sm}$  e  $n=16$  para o ramo do  $^{152}\text{Gd}$ ). O estado fundamental dos núcleos filhos é rotulado nível 0. Entre estes dois estados fundamentais, há  $n - 1$  níveis excitados dos dois núcleos filhos.



**Figura 2: Esquema de decaimento modificado do  $^{152}\text{Eu}$ .**

Para o emprego do método pico-soma, o ramo de decaimento do  $^{152}\text{Sm}$  é o que, ao cabo, será o escolhido neste estudo, pois se dá quase inteiramente por captura de elétrons e exibe raios X característicos ( $K_\alpha$  ou  $K_\beta$ ), com uma alta probabilidade de coincidência com um raio-gama em toda a faixa de energia do decaimento do  $^{152}\text{Sm}$ .

De fato, o  $^{152}\text{Eu}$  transita por inúmeras capturas de elétrons (**Tabela 1**)<sup>1</sup> aos níveis excitados do  $^{152}\text{Sm}$  (VANIN *et al.*, 2004) [11]. A transição por captura eletrônica direta ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  não existe. Entre os estados fundamentais do  $^{152}\text{Eu}$  e do  $^{152}\text{Sm}$  há 19 níveis excitados (**Figura 3**), razão pela qual há um grande número de picos de coincidência no espectro. Os valores para as energias gama, os coeficientes de conversão interna para a camada K,  $\alpha_K$ , e total,  $\alpha$ , se enumeram na **Tabela 2**. Ademais dos 73 fótons gama, o decaimento do  $^{152}\text{Eu}$  para o  $^{152}\text{Sm}$  é seguido por emissões de raios X (especialmente dois fótons KX, **Tabela 3**), como consequência dos processos de captura de elétrons e de conversão interna. No estudo visando apenas à escolha do ramo de decaimento e dos picos para aplicação do método pico-soma se tomam em conta os raios X  $K_\alpha$  e  $K_\beta$ , enquanto que outros raios X e radiação de *Bremsstrahlung* se desprezam.

**Tabela 1:** Dados nucleares do  $^{152}\text{Eu}$  para captura eletrônica

Transição Eu $\rightarrow$ Sm	Probabilidade de captura eletrônica $y_{n-i}(\times 100)$	Probabilidade de captura de elétrons da camada K $P_K$
$\epsilon_{20 \rightarrow 19}$	0,068 (5)	0,6586 (33)
$\epsilon_{20 \rightarrow 18}$	0,041 (3)	0,6903 (28)
$\epsilon_{20 \rightarrow 17}$	0,0422 (12)	0,7339 (23)
$\epsilon_{20 \rightarrow 16}$	0,889 (14)	0,7859 (19)
$\epsilon_{20 \rightarrow 15}$	0,0208 (14)	0,7966 (18)
$\epsilon_{20 \rightarrow 14}$	2,068 (12)	0,8036 (17)
$\epsilon_{20 \rightarrow 13}$	24,72 (11)	0,8109 (17)
$\epsilon_{20 \rightarrow 12}$	0,869 (24)	0,8236 (16)
$\epsilon_{20 \rightarrow 11}$	0,644 (10)	0,8271 (16)
$\epsilon_{20 \rightarrow 10}$	17,16 (8)	0,8291 (16)
$\epsilon_{20 \rightarrow 9}$	21,35 (11)	0,8327 (15)
$\epsilon_{20 \rightarrow 8}$	0,086 (7)	0,8335 (15)
$\epsilon_{20 \rightarrow 7}$	0,238 (5)	0,8338 (15)
$\epsilon_{20 \rightarrow 5}$	1,28 (3)	0,8366 (15)
$\epsilon_{20 \rightarrow 2}$	0,77 (5)	0,8398 (15)
$\epsilon_{20 \rightarrow 1}$	1,7 (10)	0,8408 (15)
	$\Sigma = 71,946$	12,7768

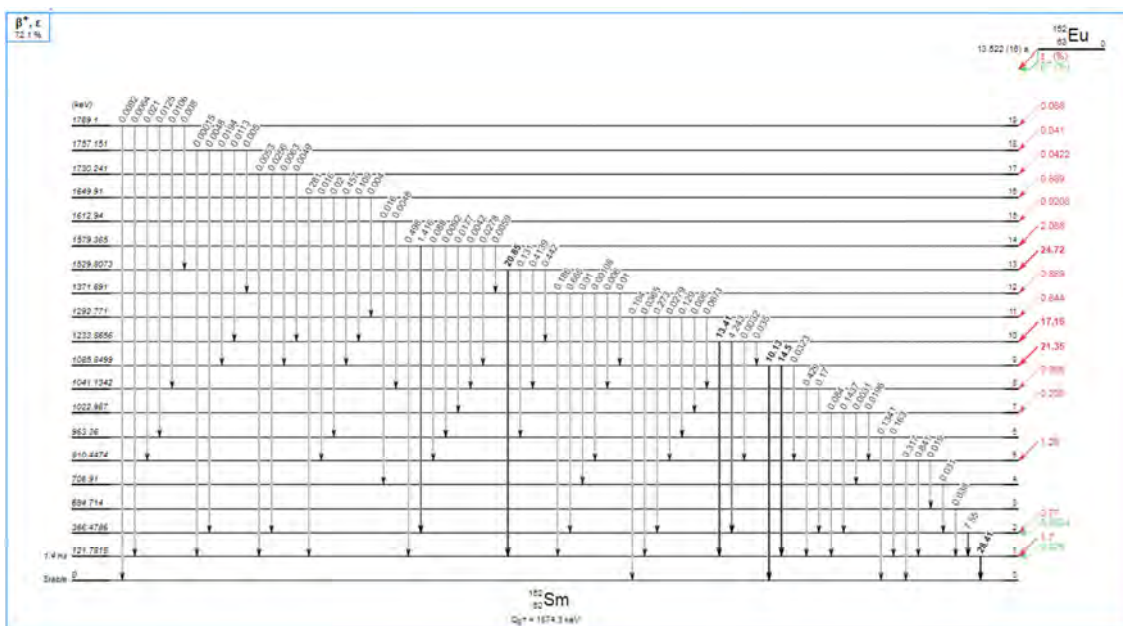
<sup>1</sup> De acordo com a recomendação do Comitê Internacional de Metrologia de Radionuclídeos (*The International Committee for Radionuclide Metrology – ICRM*), utilizamos os dados de decaimento atômico e nuclear fornecidos pelo DDEP (*Decay Data Evaluation Project*), CEA/LNE-LNHB, [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Eu-152\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-152_tables.pdf)

**Tabela 2: Dados nucleares para transições gama**

Transição para o $^{152}\text{Sm}$ nível $i \rightarrow j$	Energia (keV)	Probabilidade IC + $\gamma$ $\times 100$	Probabilidade Normalizada $y_{i-j}$	Coefficiente $\alpha_{k,ij}$	Coefficiente total $\alpha_{k,j}$
$\gamma_{1 \rightarrow 0}$	121,7818 (3)	61,5 (10)	1	0,676 (20)	1,165 (35)
$\gamma_{2 \rightarrow 1}$	244,6976 (8)	8,37 (5)	1	0,0809 (24)	0,1080 (32)
$\gamma_{3 \rightarrow 1}$	562,93 (2)	0,038 (13)	1	0,00780 (23)	0,00950 (28)
$\gamma_{4 \rightarrow 2}$	340,40 (14)	0,033 (3)	1	0,0304 (9)	0,0385 (12)
$\gamma_{5 \rightarrow 0}$	810,453 (5)	0,318 (3)	0,2041	0,0033 (1)	0,00400 (12)
$\gamma_{5 \rightarrow 1}$	688,672 (5)	0,877 (6)	0,5629	0,0359 (13)	0,0434 (13)
$\gamma_{5 \rightarrow 2}$	443,966 (3)	0,325 (18)	0,2086	0,01450 (44)	0,0178 (5)
$\gamma_{5 \rightarrow 3}$	125,69 (13)	0,038 (13)	0,0244	0,616 (18)	1,042 (31)
$\gamma_{6 \rightarrow 0}$	963,393 (12)	0,1342 (20)	0,4515	0,00100 (3)	0,001100 (33)
$\gamma_{6 \rightarrow 1}$	841,576 (5)	0,163 (2)	0,5485	0,001200 (36)	0,001500 (45)
$\gamma_{7 \rightarrow 1}$	901,184 (11)	0,084 (3)	0,3206	0,00260 (8)	0,00310 (9)
$\gamma_{7 \rightarrow 2}$	656,490 (5)	0,1519 (19)	0,5798	0,0497 (16)	0,0568 (20)
$\gamma_{7 \rightarrow 4}$	316,2 (2)	0,0032 (10)	0,0122	0,0376 (11)	0,0481 (14)
$\gamma_{7 \rightarrow 5}$	212,568 (15)	0,0229 (8)	0,0874	0,1244 (37)	0,171 (5)
$\gamma_{8 \rightarrow 1}$	919,340 (4)	0,430 (4)	0,7167	0,00100 (3)	0,001200 (36)
$\gamma_{8 \rightarrow 2}$	674,677 (3)	0,170 (4)	0,2833	0,00190 (6)	0,00230 (7)
$\gamma_{9 \rightarrow 0}$	1085,841 (10)	10,15 (6)	0,4061	0,00180 (5)	0,00210 (6)
$\gamma_{9 \rightarrow 1}$	964,082 (18)	14,54 (7)	0,5817	0,00230 (7)	0,00270 (8)
$\gamma_{9 \rightarrow 2}$	719,351 (4)	0,270 (13)	0,0108	0,00440 (13)	0,00520 (16)
$\gamma_{9 \rightarrow 5}$	275,449 (15)	0,0357 (19)	0,0014	0,0887 (27)	0,1044 (31)
$\gamma_{10 \rightarrow 1}$	1112,080 (3)	13,44 (6)	0,7569	0,00170 (5)	0,00200 (6)
$\gamma_{10 \rightarrow 2}$	867,383 (3)	4,258 (23)	0,2398	0,00290 (9)	0,0035 (1)
$\gamma_{10 \rightarrow 5}$	423,45 (4)	0,0033 (5)	0,0002	0,0226 (7)	0,0271 (8)
$\gamma_{10 \rightarrow 9}$	148,010 (17)	0,055 (8)	0,0031	0,430 (13)	0,578 (17)
$\gamma_{11 \rightarrow 0}$	1292,784 (19)	0,104 (3)	0,1603	0,001300 (39)	0,001500 (45)
$\gamma_{11 \rightarrow 1}$	1170,93 (11)	0,0366 (13)	0,0564	0,00200 (6)	0,00230 (7)
$\gamma_{11 \rightarrow 2}$	926,320 (15)	0,274 (4)	0,4223	0,00250 (8)	0,00290 (9)
$\gamma_{11 \rightarrow 5}$	482,31 (3)	0,0285 (16)	0,0439	0,01610 (48)	0,0192 (6)
$\gamma_{11 \rightarrow 6}$	329,425 (21)	0,131 (6)	0,2019	0,0100 (3)	0,01170 (35)
$\gamma_{11 \rightarrow 7}$	269,86 (6)	0,006 (3)	0,0092	0,0602 (18)	0,0789 (24)
$\gamma_{11 \rightarrow 8}$	251,633 (7)	0,0687 (15)	0,1059	0,0198 (6)	0,0233 (7)
$\gamma_{12 \rightarrow 1}$	1249,944 (13)	0,187 (3)	0,2120	0,001400 (42)	0,001600 (48)
$\gamma_{12 \rightarrow 2}$	1005,276 (17)	0,667 (23)	0,7563	0,00220 (7)	0,00260 (8)
$\gamma_{12 \rightarrow 4}$	664,78 (5)	0,010 (3)	0,0113	0,00520 (16)	0,00630 (19)
$\gamma_{12 \rightarrow 5}$	561,2 (5)	0,00109 (21)	0,0012	0,00790 (24)	0,00960 (29)
$\gamma_{12 \rightarrow 8}$	330,54 (10)	0,0061 (17)	0,0069	0,0099 (3)	0,01160 (35)
$\gamma_{12 \rightarrow 9}$	285,98 (3)	0,0107 (7)	0,0121	0,0506 (15)	0,0657 (20)
$\gamma_{13 \rightarrow 1}$	1408,013 (3)	20,86 (9)	0,8431	0,000500 (15)	0,000600 (18)
$\gamma_{13 \rightarrow 10}$	295,9390 (17)	0,449 (3)	0,0181	0,01310 (39)	0,01530 (46)
$\gamma_{13 \rightarrow 5}$	719,351 (4)	0,059 (7)	0,0024	0,00170 (5)	0,00200 (6)
$\gamma_{13 \rightarrow 6}$	566,442 (5)	0,133 (4)	0,0054	0,01170 (35)	0,01380 (41)
$\gamma_{13 \rightarrow 8}$	488,680 (2)	0,4197 (24)	0,0170	0,01150 (34)	0,01400 (42)
$\gamma_{13 \rightarrow 9}$	443,966 (3)	2,821 (22)	0,1140	0,00520 (16)	0,00600 (18)
$\gamma_{14 \rightarrow 1}$	1457,651 (11)	0,498 (4)	0,2515	0,000500 (15)	0,000500 (15)
$\gamma_{14 \rightarrow 12}$	207,6 (3)	0,0062 (4)	0,0031	0,0327 (10)	0,0385 (12)
$\gamma_{14 \rightarrow 2}$	1212,953 (11)	1,417 (9)	0,7155	0,000600 (18)	0,000700 (21)
$\gamma_{14 \rightarrow 6}$	616,05 (3)	0,0092 (6)	0,0046	0,00630 (19)	0,00760 (23)
$\gamma_{14 \rightarrow 7}$	556,56 (3)	0,0178 (11)	0,0090	0,00290 (9)	0,0034 (1)
$\gamma_{14 \rightarrow 8}$	538,29 (6)	0,0042 (6)	0,0021	0,01220 (37)	0,01450 (44)
$\gamma_{14 \rightarrow 9}$	493,508 (20)	0,028 (3)	0,0141	0,00380 (11)	0,00450 (14)
$\gamma_{15 \rightarrow 4}$	906,01 (6)	0,016 (1)	0,7692		
$\gamma_{15 \rightarrow 8}$	571,83 (8)	0,0048 (8)	0,2308		
$\gamma_{16 \rightarrow 1}$	1528,111 (18)	0,281 (5)	0,3161	0,000400 (12)	0,000500 (15)
$\gamma_{16 \rightarrow 10}$	416,049 (8)	0,1097 (17)	0,1234	0,00570 (17)	0,0067 (2)
$\gamma_{16 \rightarrow 11}$	357,26 (5)	0,0041 (5)	0,0046	0,00820 (25)	0,00960 (29)
$\gamma_{16 \rightarrow 5}$	839,36 (4)	0,0161 (8)	0,0181	0,001200 (36)	0,001500 (45)
$\gamma_{16 \rightarrow 6}$	686,61 (5)	0,0201 (17)	0,0226	0,0067 (2)	0,00790 (24)
$\gamma_{16 \rightarrow 9}$	563,991 (7)	0,458 (14)	0,5152	0,00280 (8)	0,0033 (1)
$\gamma_{17 \rightarrow 1}$	1608,36 (8)	0,0053 (3)	0,1256	0,000400 (12)	0,000400 (12)
$\gamma_{17 \rightarrow 10}$	496,39 (3)	0,0049 (8)	0,1161	0,00380 (11)	0,00440 (13)
$\gamma_{17 \rightarrow 2}$	1363,77 (5)	0,0257 (8)	0,6090	0,00170 (5)	0,00200 (6)
$\gamma_{17 \rightarrow 9}$	644,37 (5)	0,0063 (6)	0,1493	0,00210 (6)	0,00250 (8)
$\gamma_{18 \rightarrow 1}$	1635,2 (5)	0,00015 (5)	0,0036	0,00100 (3)	0,00100 (3)
$\gamma_{18 \rightarrow 10}$	523,13 (5)	0,0114 (21)	0,2770	0,01310 (39)	0,01560 (47)
$\gamma_{18 \rightarrow 12}$	385,69 (20)	0,0052 (7)	0,1264	0,0290 (9)	0,0348 (10)
$\gamma_{18 \rightarrow 2}$	1390,36 (16)	0,0048 (6)	0,1166	0,001400 (42)	0,001600 (48)
$\gamma_{18 \rightarrow 9}$	671,157 (17)	0,0196 (13)	0,4763	0,00900 (27)	0,01050 (32)
$\gamma_{19 \rightarrow 0}$	1769,09 (5)	0,0092 (3)	0,1357	0,000700 (21)	0,000700 (21)
$\gamma_{19 \rightarrow 1}$	1647,41 (14)	0,0064 (4)	0,0944	0,000800 (24)	0,000800 (24)
$\gamma_{19 \rightarrow 13}$	239,42 (17)	0,008 (3)	0,1180	0,0225 (7)	0,0265 (8)
$\gamma_{19 \rightarrow 5}$	958,63 (5)	0,0211 (19)	0,3112	0,00310 (9)	0,00360 (11)
$\gamma_{19 \rightarrow 6}$	805,70 (7)	0,0125 (8)	0,1844	0,001400 (42)	0,001600 (48)
$\gamma_{19 \rightarrow 8}$	727,99 (14)	0,0106 (13)	0,1563	0,00166 (5)	0,00193 (6)

**Tabela 3:** Dados atômicos do Európio

Radiação X	Energia média ponderada	Probabilidade relativa	Probabilidade normalizada, g	Rendimento de fluorescência, $\omega_k$
$K_{\alpha 1}$	40,1186	100	0,5140	0,926 (4)
$K_{\alpha 2}$	39,5229	55,25	0,2840	
$K_{\beta 3}$	45,289	31,23	0,1605	
$K_{\beta 1}$	44,413			
$K_{\beta 5''}$	45,731			
$K_{\beta 2}$	46,575	8,06	0,0414	
$K_{\beta 4}$	46,705			



**Figura 3:** Visão geral do ramo do  $^{152}\text{Sm}$  no esquema de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$ .

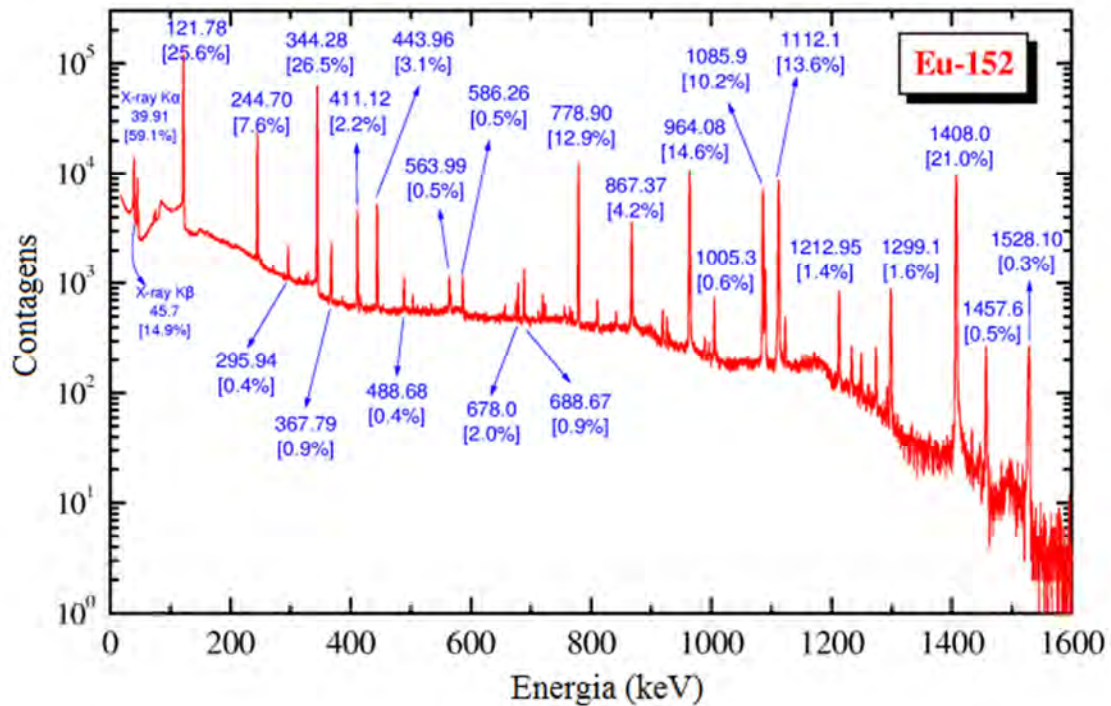
Como no espectro energético do  $^{152}\text{Eu}$  se observa um grande número de picos-soma, era necessário encontrar uma metodologia para determinar quais os fótons, dentre os indicados na **Figura 4**<sup>2</sup>, poderiam ser considerados para a aplicação do método pico-soma, uma vez que tentativas com alguns deles não apresentavam bons resultados. Depois de muita pesquisa chegou-se a técnica que descreveremos em detalhe mais adiante, nunca antes utilizada para esta finalidade.

Foi, precisamente, por indicação fornecida pela técnica da matriz, um método utilizado para derivar equações de taxa de contagem descrevendo as soma-coincidências de raios gama e X (NOVKOVIĆ *et al.*, 2007a) [13], que foram utilizadas as coincidências justamente no ramo do Samário entre os raios X característicos  $K_{\alpha}$  (39,9 KeV) ou  $K_{\beta}$  (45,9 KeV) e a radiação gama de 121 keV,  $\gamma_{1-0}$  ( $^{152}\text{Sm}$ ), sem o efeito de

<sup>2</sup> Department of Physics, University of Cyprus, Nuclear and Heavy-Ion Physics Website: [http://www-np.ucy.ac.cy/radio\\_isotopes/wwwen/gamma/gamma\\_setup.html](http://www-np.ucy.ac.cy/radio_isotopes/wwwen/gamma/gamma_setup.html). Acesso em 20/11/2018.



correlação angular que normalmente aparece apenas entre fótons emitidos em cascatas de raios gama. De fato, as desexcitações do núcleo e das camadas eletrônicas do átomo podem ser tratadas como decaimentos não correlacionados e como tal possuindo correlações angulares isotrópicas entre as radiações emitidas. Isso significa que nenhum efeito de correlação angular precisa ser levado em consideração nas correções por efeito soma devido a raios X.



**Figura 4:** Visão geral de um espectro do  $^{152}\text{Eu}$

Adiantando o assunto, ao se observar as equações de taxa de contagem que serão deduzidas mais adiante, algumas apresentadas também por JORDANOV *et al.* (2016) [12], onde  $a$ ,  $b$ ,  $\gamma$  e  $q$  (com seus respectivos índices) são as correspondentes probabilidades de detecção ou de não detecção de fótons emitidos nas transições de um nível maior para um menor, é possível entender por que os picos de energias X e  $\gamma$  acima mencionados foram escolhidos para a aplicação do método pico-soma, uma vez que sua formação não sofre influência significativa de outros.

De fato, como logo comprovaremos, para o pico correspondente à energia do raio-X  $K\alpha$  do  $^{152}\text{Sm}$  (39,9 keV) a taxa de contagem depende apenas das probabilidades ( $a_{n-i}$  e  $a_{i-j}$ ) de detectar fótons  $K\alpha$  e das probabilidades ( $q_{n-i}$  e  $q_{i-j}$ ) deles não serem detectados. O mesmo para o pico correspondente ao raio-X  $K\beta$  do  $^{152}\text{Sm}$  (45,9 keV),

cuja taxa de contagem depende apenas das probabilidades ( $b_{n-i}$  e  $b_{i-j}$ ) de detectar fótons  $K_{\beta}$  e das probabilidades ( $q_{n-i}$  e  $q_{i-j}$ ) de não detecção. Para o pico gama de 121,8 keV, a taxa de contagem depende apenas da probabilidade  $\gamma_{1-0}$  de detectar o gama e das probabilidades ( $q_{i-j}$ ) de não detecção. Para os picos-soma de 161,7 keV (121,8 + 39,9) e 167,7 keV (121,8 + 45,9), a taxa de contagem depende apenas das probabilidades dos fótons relacionados e das probabilidades de não detectar nenhum fóton.

### **3.1.1 Dedução das equações de taxa de contagem de pico descrevendo as coincidências-soma de gama e raios X**

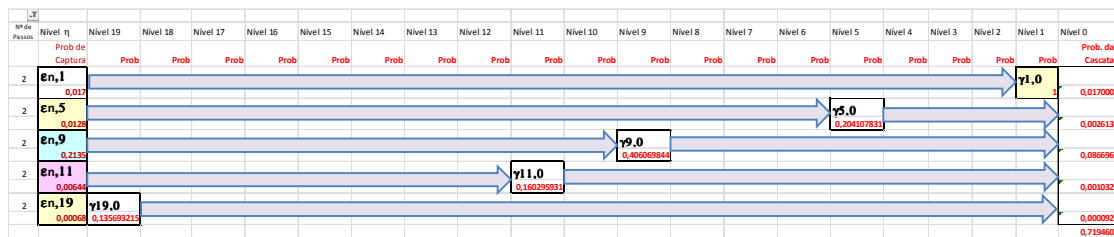
Visando determinar a transição gama mais adequada para a aplicação do método pico-soma pela abordagem aqui proposta, utilizou-se inicialmente uma técnica matricial para deduzir equações de taxa de contagem de picos do espectro fotônico, equações que descrevem as somas por coincidência de raios X e gama de radionuclídeos, como o  $^{152}\text{Eu}$ , no qual a cascata de desexcitação do núcleo tem lugar simultaneamente com a desexcitação em cascata da camada eletrônica do átomo. Por meio da análise detalhada do espectro, a partir dos 628092 resultados teóricos obtidos das 285 diferentes rotas de decaimento, este método permite determinar, dentre os 160 picos (picos de absorção total) possíveis (fotopicos e picos-soma), a influência dos efeitos *summing-in* (efeitos de soma em cascata) nos cerca de 50 picos normalmente registrados, por exemplo, em um espectrômetro HPGe com uma eficiência relativa de 50%.

A aplicação de enfoques analíticos para calcular efeitos soma por coincidência permite prever todos os picos soma que se produzem em um espectro. São enfoques que permitem escrever equações de taxa de contagem para picos de absorção total (fotopicos), para os picos soma por coincidência e para a taxa de contagem total. Determinando-se, por programas matemáticos comerciais, as raízes do sistema destas equações, poder-se-ia até determinar as eficiências de pico e total, assim como a atividade das fontes radioativas, que são incógnitas nestas equações. O método DMM (multiplicação direta de matrizes) gera expressões teóricas das taxas de contagem para cada pico de absorção total de um espectro (fotopicos e picos-soma, excluindo os picos de escape), assim como para a taxa de contagem total. Utilizando este método, pode-se identificar todas as possíveis rotas de decaimento e calcular suas consequências em um detector (energias depositadas e as respectivas probabilidades de deposição), para os

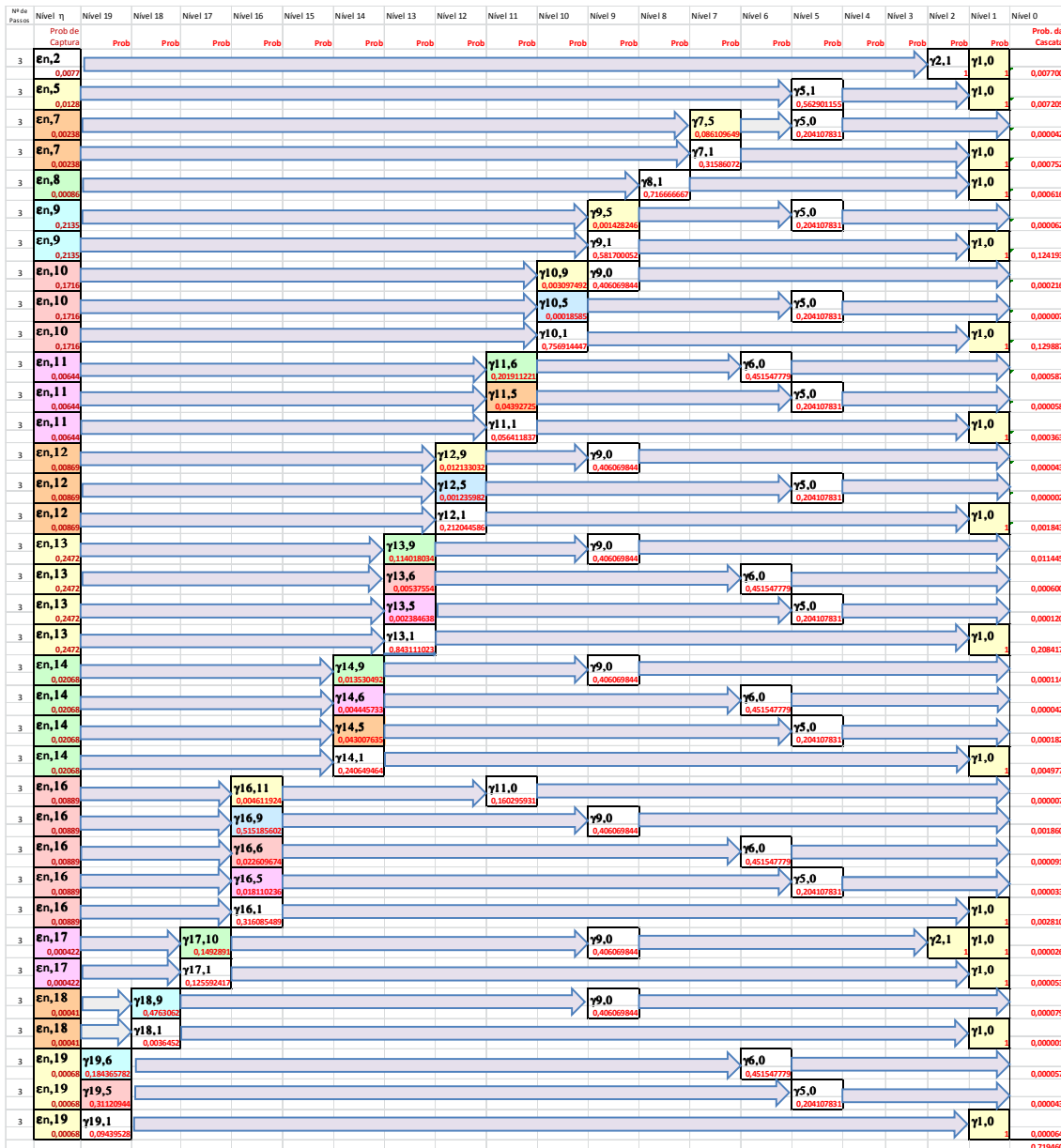
casos em que se desconhecem as eficiências de pico e total do mesmo e a atividade da fonte medida.

### 3.1.2 Expondo as trajetórias e suas probabilidades

Uma rota ou trajetória de decaimento seguida no curso do processo de desintegração se define pelas transições em cascata desde o estado fundamental do núcleo pai até o estado fundamental do filho. A transição do  $^{152}\text{Eu}$  ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  pode ocorrer através de 285 rotas alternativas em 2, 3, 4, 5, 6, 7 e 8 passos, conforme **Figuras 5, 6, 7, 8, 9, 10 e 11**, respectivamente. Na parte inferior de cada linha, que representa as transições em cascata por rota, destaca-se em vermelho a probabilidade normalizada correspondente a cada transição. Representando uma mesma planilha Excel, com um filtro aplicado na primeira coluna (relativa ao número de passos para completar o trajeto), as figuras também mostram (ao final de cada linha com as probabilidades de transição passo a passo) a probabilidade final de cada rota (última coluna correspondente ao produto das probabilidades normalizadas de transição). De fato, como cada rota se vê como uma série temporal, a probabilidade de segui-la, calculada aqui mediante uma planilha Excel e revisada mais adiante mediante um formalismo matricial, simplesmente pode ser vista como um produto de probabilidades de transição normalizadas.



**Figura 5:** Trajetórias de decaimento para a transição do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 2 passos.



**Figura 6:** Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 3 passos.

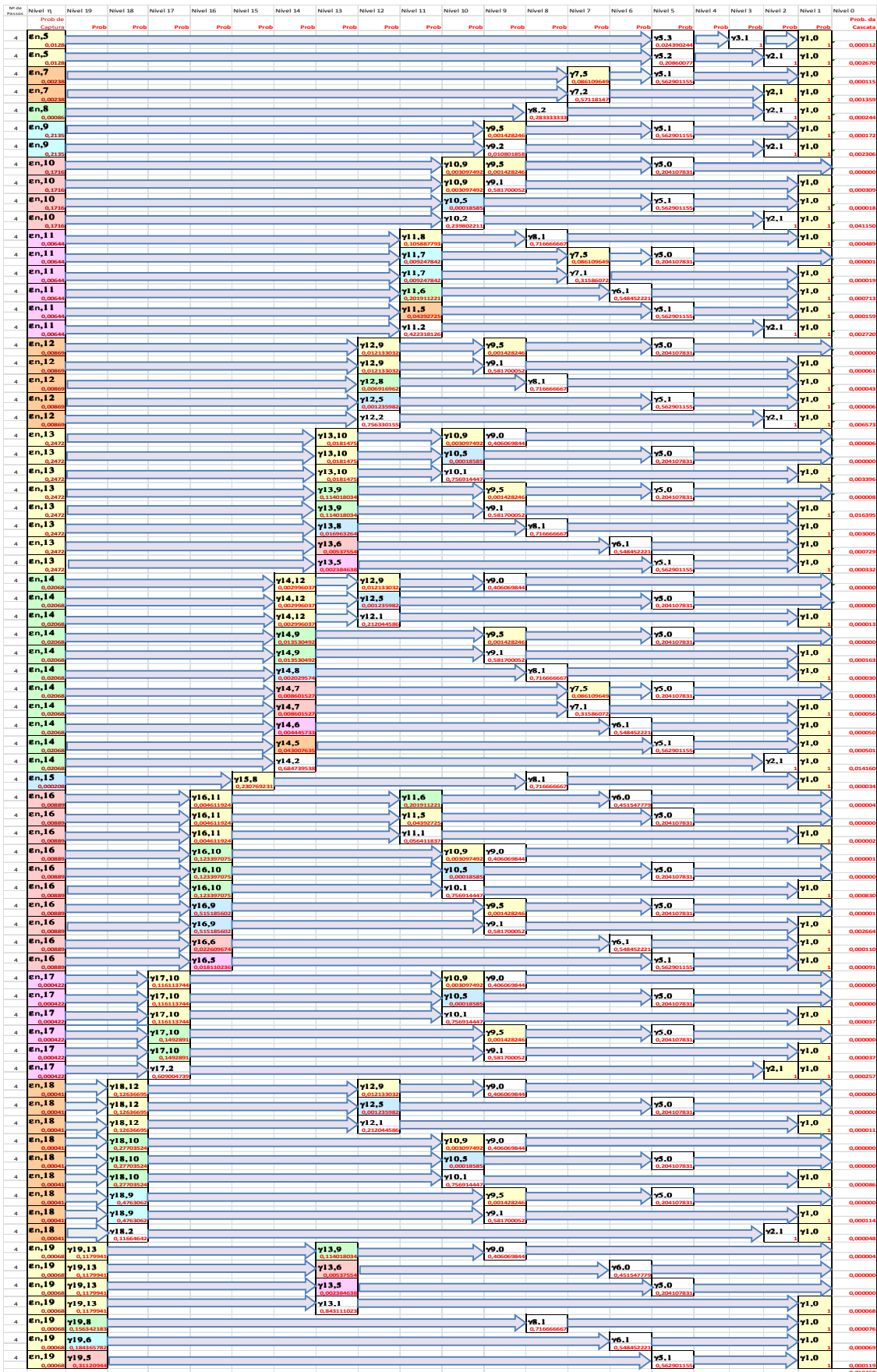


Figura 7: Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 4 passos.

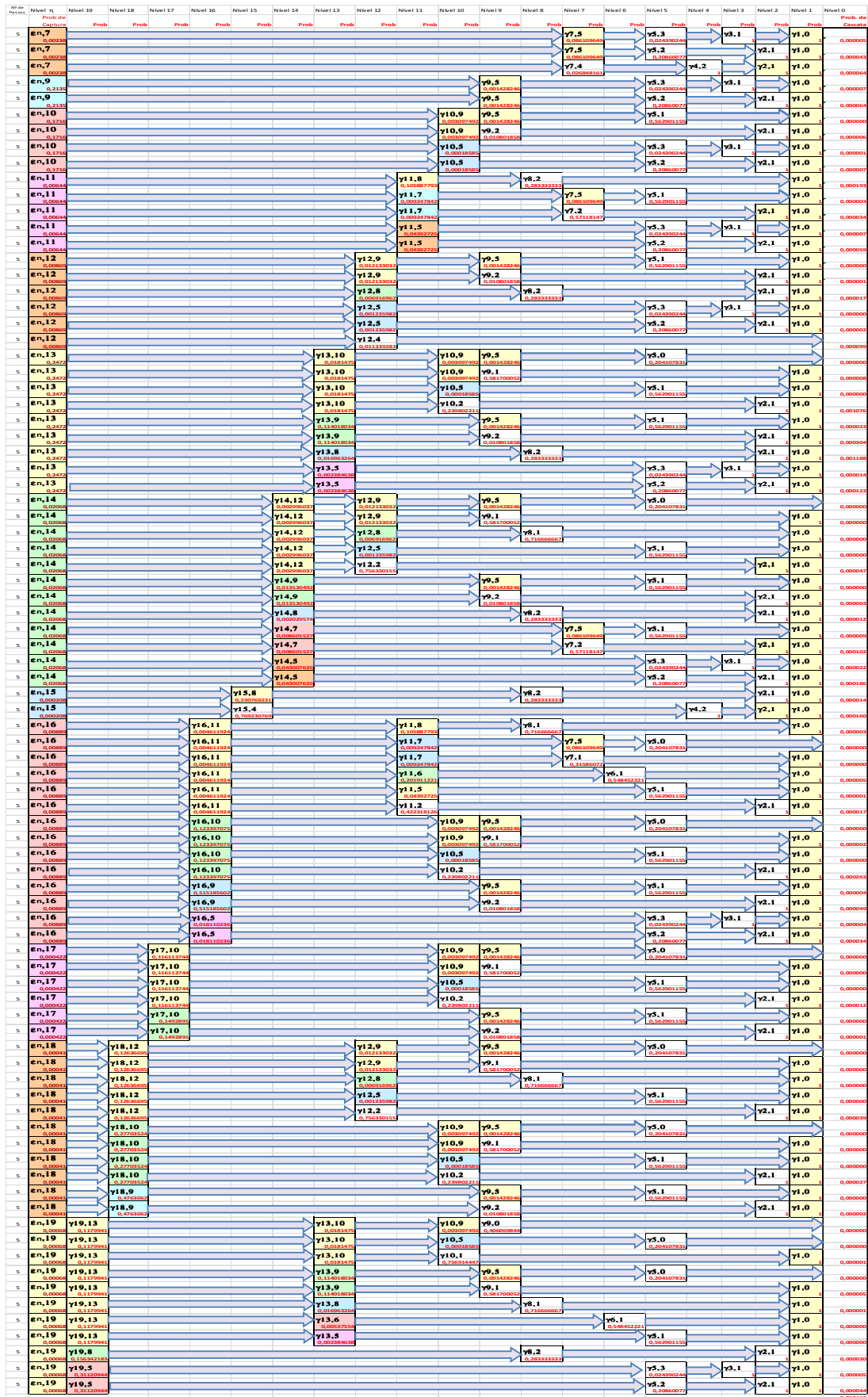


Figura 8: Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 5 passos.

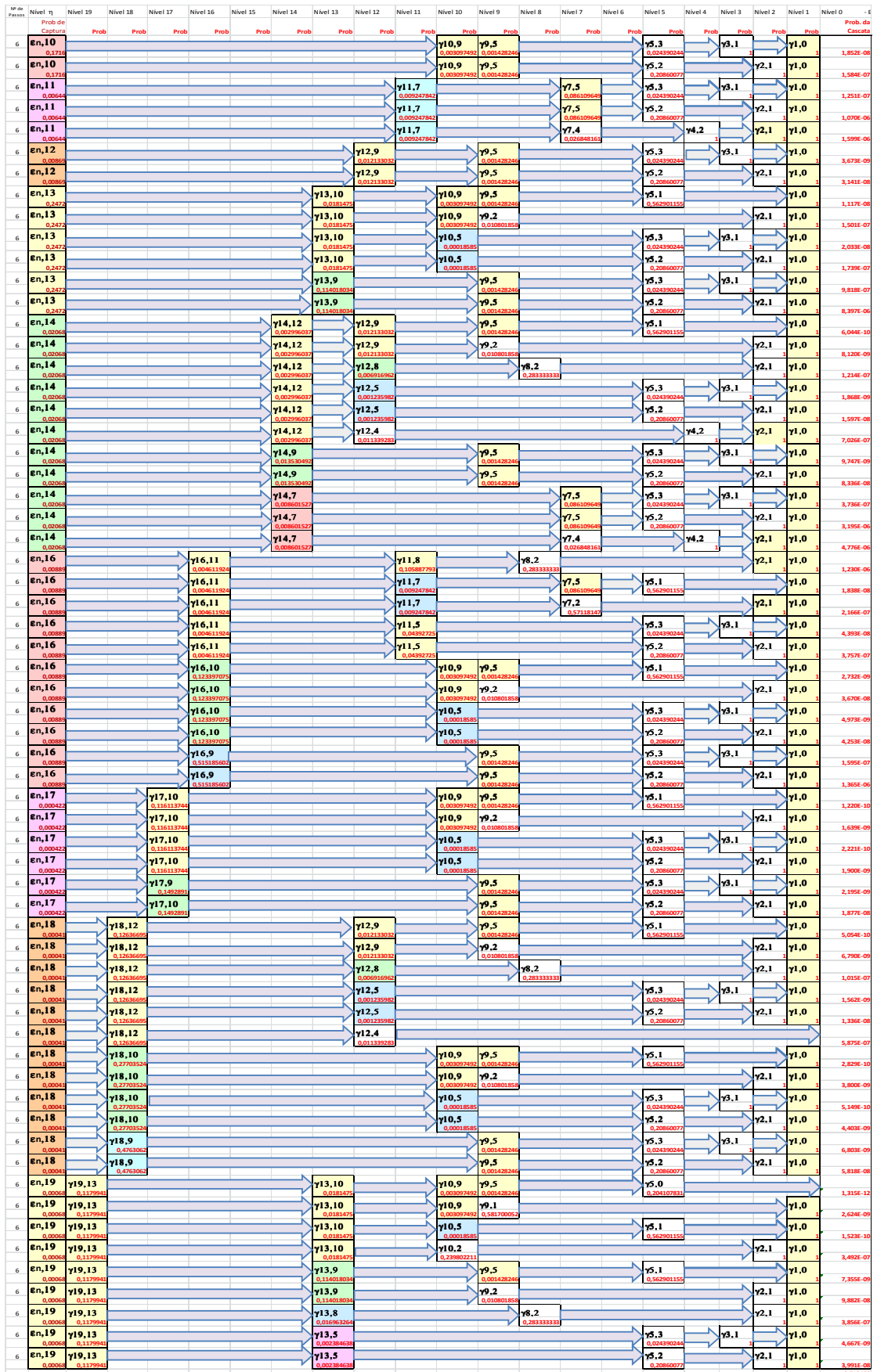
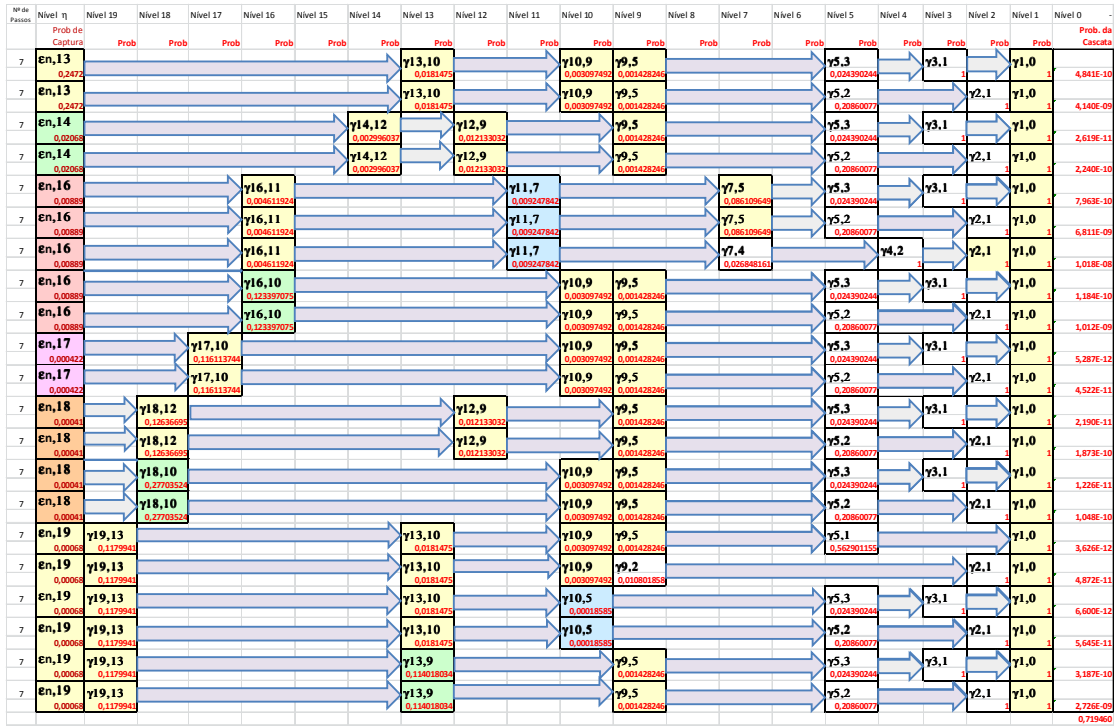
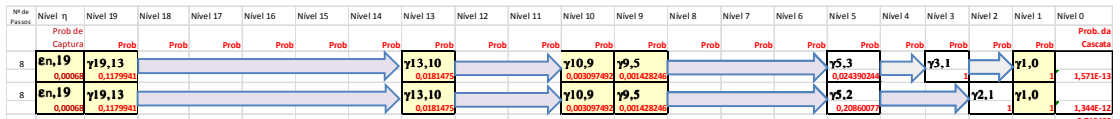


Figura 9: Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 6 passos.



**Figura 10:** Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 7 passos.



**Figura 11:** Trajetórias de decaimento para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível  $n = 20$ ) ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0) em 8 passos.

A **Tabela 4** resume o número de rotas ou trajetórias de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$  ao  $^{152}\text{Sm}$  e as respectivas probabilidades. A desintegração direta do núcleo pai ao estado fundamental do filho (rota de desintegração em 1 passo) não existe.

**Tabela 4:** Número de rotas de decaimento e respectivas probabilidades para a transição do  $^{152}\text{Eu}$  ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em diferentes passos

Número de passos ( $^{152}\text{Sm}$ )	1	2	3	4	5	6	7	8	Total
Número de rotas	0	5	36	74	85	62	21	2	<b>285</b>
Probabilidades	0	0,107433	0,504594	0,102952	0,004453	0,000027	2,73282E <sup>-8</sup>	1,50085E <sup>-12</sup>	<b>0,72219</b>



### 3.1.3 Enfoque teórico analítico para a soma-coincidência de fótons do <sup>152</sup>Eu usando um formalismo matricial

Um possível enfoque para verificar a identificação de todas as rotas de decaimento e suas probabilidades e obter as equações de taxa de contagem (que descrevem as somas por coincidência que se produz em espectroscopia gama) se baseia em um formalismo matricial desenvolvido por NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13] e por NAÐÐERÐ, *et al.* (2012) [66] para esquemas de decaimento complexos.

O método de NOVKOVIĆ *et al.* (2007a) [13], aqui utilizado, foi mais tarde denominado Método de Multiplicação Diretas de Matrizes (DMM) (NOVKOVIĆ *et al.*, 2012b) [26]. Usando um formalismo matemático (que inclui o produto direto e as somas diretas de algumas matrizes, cujos elementos não são números, senão listas de probabilidades de detecção e energias adequadamente arranjadas), todos os possíveis caminhos ou rotas de desintegração podem ser identificados, as probabilidades de cada trajetória podem ser calculadas e, finalmente, podem ser determinadas as consequências resultantes (*path outcomes*) em um detector, ou seja, a probabilidade de detecção de fótons e a correspondente energia depositada. O método permite determinar expressões teóricas para as taxas de contagem para cada pico (excluindo picos de escape), assim como a taxa de contagem total. O método de NOVKOVIĆ (2007a) [13] representou a extensão do método da matriz, introduzido por SEMKOW *et al.* (1990) [58] e modificado por KORUN e MARTINČIĆ (1993) [45] que introduziu níveis virtuais no esquema de desintegração para cada transição que resultasse raios X. O método anterior se aplicava apenas a núcleos com um esquema de desintegração relativamente simples, ainda que seguido por emissão de raios X. O enfoque atual deste problema se baseou no formalismo matricial somente na fase inicial. A análise posterior se baseia na identificação de todas as vias de desintegração e seus múltiplos resultados.

### 3.1.4 Matriz das Trajetórias de Decaimento

Com a finalidade de determinar as trajetórias de decaimento (rotas ou caminhos de desintegração) se introduz uma matriz triangular estritamente inferior (*strictly lower-triangular matrix*), como X, expressão (8), com os elementos de interesse colocados sob a diagonal principal (alguns deles podendo até ser nulos). Em álgebra linear, uma matriz triangular estritamente inferior é um tipo especial de matriz quadrada, cujos valores da diagonal principal e acima dela são todos iguais a zero, ou seja,  $x_{i-j} = 0$  para  $i \leq j$ .

Começaremos imaginando um esquema de desintegração geral que representa um núcleo que se desintegra por  $n$  capturas de elétrons em um núcleo filho que tem  $n-1$  níveis excitados, recordando que o estado fundamental do núcleo pai se apresenta como um nível excitado do núcleo filho, rotulado por  $n$ , e o estado fundamental do núcleo filho é marcado por 0.

A matriz  $X$  correspondente a este esquema assim modificado (8) é uma matriz quadrada  $(n + 1) \times (n + 1)$ ,

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ x_{10} & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ x_{20} & x_{21} & 0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ x_{n0} & x_{n1} & \cdots & x_{nn-1} & 0 \end{bmatrix} \quad (8)$$

em que,  $x_{i,j}$  representa transições do  $i$ -ésimo nível ao  $j$ -ésimo ( $j < i < n$ ) ( $x_{n,j}$ , na última linha, representa transições por captura eletrônica do nível  $n$  ao nível  $j$ ).

O núcleo filho do  $^{152}\text{Eu}$ , o  $^{152}\text{Sm}$ , tem 19 (ou  $n - 1$ ) níveis excitados, e as matrizes descrevendo as trajetórias de decaimento têm 21 linhas e 21 colunas, incluídos os estados fundamentais do  $^{152}\text{Eu}$  e do  $^{152}\text{Sm}$ . A transição, desde o estado fundamental do núcleo pai até o estado fundamental do núcleo filho, pode ocorrer através de rotas alternativas em  $k$  passos ou etapas ( $k = 1, 2, \dots, 8$ ).

Todas estas possíveis rotas de desintegração se identificam calculando os elementos matriciais  $[\mathbf{X}^k]_{20-0}$  ( $k = 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7$  e  $8$ ), ou seja,  $[\mathbf{X}]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^2]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^3]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^4]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^5]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^6]_{20-0}$ ,  $[\mathbf{X}^7]_{20-0}$  e  $[\mathbf{X}^8]_{20-0}$ . Cada um é o elemento da primeira coluna (ou coluna número 0 em nossa notação) e vigésima primeira linha (linha número 20) das oito matrizes, da primeira até a oitava potência de  $X$ . Devido à extensão de seus elementos, é possível ilustrar apenas três das oito matrizes citadas, as da primeira, segunda e oitava potência da matriz  $X$  (figuras 12 - 14), transcrevendo, entretanto, através das equações (9), (10), (11), (12), (13), (14) e (15), o elemento de interesse de todas elas.

$$X = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ x_{10} & 0 \\ 0 & x_{21} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & x_{31} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & x_{42} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{50} & x_{51} & x_{52} & x_{53} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{60} & x_{61} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{71} & x_{72} & 0 & x_{74} & x_{75} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{81} & x_{82} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{90} & x_{91} & x_{92} & 0 & 0 & x_{95} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{101} & x_{102} & 0 & 0 & x_{105} & 0 & 0 & 0 & 0 & x_{109} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{110} & x_{111} & x_{112} & 0 & 0 & x_{115} & x_{116} & x_{117} & x_{118} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{121} & x_{122} & 0 & 0 & x_{124} & x_{125} & 0 & 0 & x_{128} & x_{129} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{131} & 0 & 0 & 0 & x_{135} & x_{136} & 0 & x_{138} & x_{139} & x_{1310} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{141} & x_{142} & 0 & 0 & x_{145} & x_{146} & x_{147} & x_{148} & x_{149} & 0 & 0 & x_{1412} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & x_{154} & 0 & 0 & 0 & x_{158} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{161} & 0 & 0 & 0 & x_{165} & x_{166} & 0 & 0 & x_{169} & x_{1610} & x_{1611} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{171} & x_{172} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & x_{179} & x_{1710} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{181} & x_{182} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & x_{189} & x_{1810} & 0 & 0 & x_{1812} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ x_{190} & x_{191} & 0 & 0 & 0 & x_{195} & x_{196} & 0 & x_{198} & 0 & 0 & 0 & 0 & x_{1913} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & x_{201} & x_{202} & 0 & 0 & x_{205} & 0 & x_{207} & x_{208} & x_{209} & x_{2010} & x_{2011} & x_{2012} & x_{2013} & x_{2014} & x_{2015} & x_{2016} & x_{2017} & x_{2018} & x_{2019} & 0 \end{pmatrix}$$

**Figura 12:** Matriz quadrada X (21 x 21) ilustrando as possibilidades de transição entre níveis no esquema de decaimento por captura eletrônica do  $^{152}\text{Eu}$  para o  $^{152}\text{Sm}$ .

Para  $k = 1$ , na **Figura 12**, como não há transição direta (por captura eletrônica) do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  (nível 20) para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  (nível 0), o elemento de interesse é nulo,  $[X]_{20-0} = 0$ .

```
MatrixPower[X, 2] // MatrixForm // ExpandAll
```

$$X^2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ x_{10} x_{21} & 0 \\ x_{10} x_{31} & 0 \\ 0 & 0 \\ x_{10} x_{51} & 0 \\ x_{10} x_{61} & 0 \\ x_{10} x_{71} + x_{50} x_{75} & 0 \\ x_{10} x_{81} & 0 \\ x_{10} x_{91} + x_{50} x_{95} & 0 \\ x_{10} x_{101} + x_{50} x_{105} + x_{90} x_{109} & 0 \\ x_{10} x_{111} + x_{50} x_{115} + x_{60} x_{116} & 0 \\ x_{10} x_{121} + x_{50} x_{125} + x_{90} x_{129} & 0 \\ x_{10} x_{131} + x_{50} x_{135} + x_{60} x_{136} + x_{90} x_{139} & 0 \\ x_{10} x_{141} + x_{50} x_{145} + x_{60} x_{146} + x_{90} x_{149} & 0 \\ 0 & 0 \\ x_{10} x_{161} + x_{50} x_{165} + x_{60} x_{166} + x_{90} x_{169} + x_{110} x_{1611} & 0 \\ x_{10} x_{171} + x_{90} x_{179} & 0 \\ x_{10} x_{181} + x_{90} x_{189} & 0 \\ x_{10} x_{191} + x_{50} x_{195} + x_{60} x_{196} & 0 \\ x_{10} x_{201} + x_{50} x_{205} + x_{90} x_{209} + x_{110} x_{2011} + x_{190} x_{2019} & x_{1913} x_{2019} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

**Figura 13:** Representação parcial da matriz 21x21,  $X^2$  (quadrado de X calculado pelo programa *Wolfram Mathematica*), permitindo a visualização do elemento  $[X^2]_{20-0}$  que expressa a transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em dois passos.

Na figura 13 acima, as cinco parcelas do elemento  $[X^2]_{20-0}$  indicam serem cinco as possibilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em dois passos. Vide equação (9):

$$[X^2]_{20-0} = x_{1-0}x_{20-1} + x_{5-0}x_{20-5} + x_{9-0}x_{20-9} + x_{11-0}x_{20-11} + x_{19-0}x_{20-19} \quad (9)$$

São trinta e seis as possibilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em três passos, conforme indica o número de parcelas (de três fatores) do elemento  $[X^3]_{20-0}$  da matriz X ao cubo - equação (10):

$$\begin{aligned} [X^3]_{20-0} &= \\ &x_{1-0}x_{2-1}x_{20-2} + x_{1-0}x_{5-1}x_{20-5} + x_{1-0}x_{7-1}x_{20-7} + x_{5-0}x_{7-5}x_{20-7} + \\ &x_{1-0}x_{8-1}x_{20-8} + x_{1-0}x_{9-1}x_{20-9} + x_{5-0}x_{9-5}x_{20-9} + x_{1-0}x_{10-1}x_{20-10} + \\ &x_{5-0}x_{10-5}x_{20-10} + x_{9-0}x_{10-9}x_{20-10} + x_{1-0}x_{11-1}x_{20-11} + x_{5-0}x_{11-5}x_{20-11} + \\ &x_{6-0}x_{11-6}x_{20-11} + x_{1-0}x_{12-1}x_{20-12} + x_{5-0}x_{12-5}x_{20-12} + x_{9-0}x_{12-9}x_{20-12} + \\ &x_{1-0}x_{13-1}x_{20-13} + x_{5-0}x_{13-5}x_{20-13} + x_{6-0}x_{13-6}x_{20-13} + x_{9-0}x_{13-9}x_{20-13} + \\ &x_{1-0}x_{14-1}x_{20-14} + x_{5-0}x_{14-5}x_{20-14} + x_{6-0}x_{14-6}x_{20-14} + x_{9-0}x_{14-9}x_{20-14} + \\ &x_{1-0}x_{16-1}x_{20-16} + x_{5-0}x_{16-5}x_{20-16} + x_{6-0}x_{16-6}x_{20-16} + x_{9-0}x_{16-9}x_{20-16} + \\ &x_{11-0}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{17-1}x_{20-17} + x_{9-0}x_{17-9}x_{20-17} + x_{1-0}x_{18-1}x_{20-18} + \\ &x_{9-0}x_{18-9}x_{20-18} + x_{1-0}x_{19-1}x_{20-19} + x_{5-0}x_{19-5}x_{20-19} + x_{6-0}x_{19-6}x_{20-19} \end{aligned} \quad (10)$$

Conforme a equação (11), as setenta e quatro parcelas do elemento  $[X^4]_{20-0}$  indicam serem setenta e quatro as possibilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em quatro passos (quatro fatores por parcela):

$$\begin{aligned} [X^4]_{20-0} &= x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{20-5} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{20-5} + x_{1-0}x_{2-1}x_{7-2}x_{20-7} + \\ &x_{1-0}x_{5-1}x_{7-5}x_{20-7} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{20-8} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{20-9} + \\ &x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{20-9} + x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{20-10} + x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{20-10} + \\ &x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{20-10} + x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{20-10} + x_{1-0}x_{2-1}x_{11-2}x_{20-11} + \\ &x_{1-0}x_{5-1}x_{11-5}x_{20-11} + x_{1-0}x_{6-1}x_{11-6}x_{20-11} + x_{1-0}x_{7-1}x_{11-7}x_{20-11} + \\ &x_{5-0}x_{7-5}x_{11-7}x_{20-11} + x_{1-0}x_{8-1}x_{11-8}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{12-2}x_{20-12} + \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& x_{1-0}x_{5-1}x_{12-5}x_{20-12} + x_{1-0}x_{8-1}x_{12-8}x_{20-12} + x_{1-0}x_{9-1}x_{12-9}x_{20-12} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{12-9}x_{20-12} + x_{1-0}x_{5-1}x_{13-5}x_{20-13} + x_{1-0}x_{6-1}x_{13-6}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{8-1}x_{13-8}x_{20-13} + x_{1-0}x_{9-1}x_{13-9}x_{20-13} + x_{5-0}x_{9-5}x_{13-9}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{10-1}x_{13-10}x_{20-13} + x_{5-0}x_{10-5}x_{13-10}x_{20-13} + x_{9-0}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{14-2}x_{20-14} + x_{1-0}x_{5-1}x_{14-5}x_{20-14} + x_{1-0}x_{6-1}x_{14-6}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{7-1}x_{14-7}x_{20-14} + x_{5-0}x_{7-5}x_{14-7}x_{20-14} + x_{1-0}x_{8-1}x_{14-8}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{9-1}x_{14-9}x_{20-14} + x_{5-0}x_{9-5}x_{14-9}x_{20-14} + x_{1-0}x_{12-1}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{5-0}x_{12-5}x_{14-12}x_{20-14} + x_{9-0}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{8-1}x_{15-8}x_{20-15} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{16-5}x_{20-16} + x_{1-0}x_{6-1}x_{16-6}x_{20-16} + x_{1-0}x_{9-1}x_{16-9}x_{20-16} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{16-9}x_{20-16} + x_{1-0}x_{10-1}x_{16-10}x_{20-16} + x_{5-0}x_{10-5}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{9-0}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + x_{1-0}x_{11-1}x_{16-11}x_{20-16} + x_{5-0}x_{11-5}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{6-0}x_{11-6}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{2-1}x_{17-2}x_{20-17} + x_{1-0}x_{9-1}x_{17-9}x_{20-17} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{17-9}x_{20-17} + x_{1-0}x_{10-1}x_{17-10}x_{20-17} + x_{5-0}x_{10-5}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{9-0}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + x_{1-0}x_{2-1}x_{18-2}x_{20-18} + x_{1-0}x_{9-1}x_{18-9}x_{20-18} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{18-9}x_{20-18} + x_{1-0}x_{10-1}x_{18-10}x_{20-18} + x_{5-0}x_{10-5}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{9-0}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + x_{1-0}x_{12-1}x_{18-12}x_{20-18} + x_{5-0}x_{12-5}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{9-0}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{5-1}x_{19-5}x_{20-19} + x_{1-0}x_{6-1}x_{19-6}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{8-1}x_{19-8}x_{20-19} + x_{1-0}x_{13-1}x_{19-13}x_{20-19} + x_{5-0}x_{13-5}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{6-0}x_{13-6}x_{19-13}x_{20-19} + x_{9-0}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19}
\end{aligned}
\tag{11}$$

A quantidade de parcelas (oitenta e cinco) do elemento  $[X^5]_{20,0}$  (12) indica o número de possibilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em 5 passos:

$$\begin{aligned}
& [X^5]_{20,0} \\
& = x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{7-4}x_{20-7} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{7-5}x_{20-7} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{7-5}x_{20-7} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{20-9} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{20-9} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{20-10} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{20-10} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{20-10} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{20-10} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{11-5}x_{20-11} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{11-5}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{7-2}x_{11-7}x_{20-11} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{7-5}x_{11-7}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{11-8}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{12-4}x_{20-12} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{12-5}x_{20-12} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{12-5}x_{20-12} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{12-8}x_{20-12} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{12-9}x_{20-12} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{12-9}x_{20-12} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{13-5}x_{20-13} +
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{13-5}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{13-8}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{13-9}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{13-9}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{13-10}x_{20-13} + x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{14-5}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{14-5}x_{20-14} + x_{1-0}x_{2-1}x_{7-2}x_{14-7}x_{20-14} + x_{1-0}x_{5-1}x_{7-5}x_{14-7}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{14-8}x_{20-14} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{14-9}x_{20-14} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{14-9}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{12-2}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{5-1}x_{12-5}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{8-1}x_{12-8}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{9-1}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{15-4}x_{20-15} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{15-8}x_{20-15} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{16-5}x_{20-16} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{16-5}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{16-9}x_{20-16} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{16-9}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{16-10}x_{20-16} + x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{11-2}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{5-1}x_{11-5}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{6-1}x_{11-6}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{7-1}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{5-0}x_{7-5}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{8-1}x_{11-8}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{17-9}x_{20-17} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{17-9}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{17-10}x_{20-17} + x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{18-9}x_{20-18} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{18-9}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{18-10}x_{20-18} + x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{12-2}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{5-1}x_{12-5}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{8-1}x_{12-8}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{9-1}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{19-5}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{19-5}x_{20-19} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{19-8}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{13-5}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{6-1}x_{13-6}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{8-1}x_{13-8}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{9-1}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{5-0}x_{9-5}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{10-1}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{5-0}x_{10-5}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + x_{9-0}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19}
\end{aligned}$$

(12)

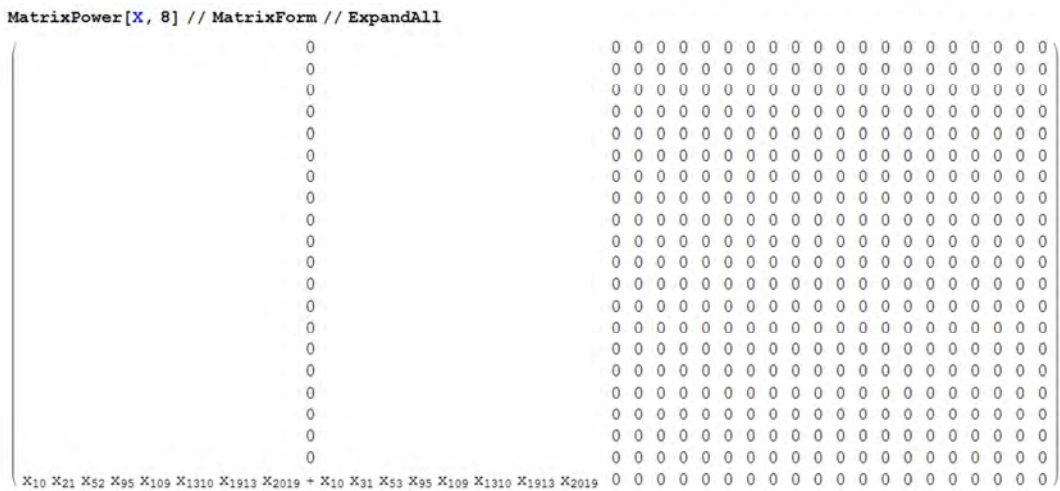
As sessenta e duas parcelas do elemento  $[X^6]_{20,0}$  indicam serem sessenta e duas as possibilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em seis passos, conforme a equação seguinte (13):

$$\begin{aligned}
[X^6]_{20,0} = & x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{20-10} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{20-10} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{7-4}x_{11-7}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{7-5}x_{11-7}x_{20-11} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{7-5}x_{11-7}x_{20-11} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{12-9}x_{20-12} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{12-9}x_{20-12} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{13-9}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{13-9}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{13-10}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{7-4}x_{14-7}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{7-5}x_{14-7}x_{20-14} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{7-5}x_{14-7}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{14-9}x_{20-14} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{14-9}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{12-4}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{12-5}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{12-5}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{12-8}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{16-9}x_{20-16} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{16-9}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{16-10}x_{20-16} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{11-5}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{11-5}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{7-2}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{5-1}x_{7-5}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{11-8}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{17-9}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{17-9}x_{20-17} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{17-10}x_{20-17} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{18-9}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{18-9}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{18-10}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{12-4}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{12-5}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{12-5}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{12-8}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{13-5}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{13-5}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{2-1}x_{8-2}x_{13-8}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} +
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& x_{1-0}x_{2-1}x_{10-2}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{5-1}x_{10-5}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{9-1}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + x_{5-0}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19}
\end{aligned} \tag{13}$$

São vinte e uma as possibilidades de transição do <sup>152</sup>Eu para o estado fundamental do <sup>152</sup>Sm em sete passos conforme indicam as vinte e uma parcelas do elemento  $[X^6]_{20-0}$  com sete fatores cada uma. Vide equação (14):

$$\begin{aligned}
& [X^7]_{20-0} = \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{20-13} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{12-9}x_{14-12}x_{20-14} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{16-10}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{2-1}x_{4-2}x_{7-4}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{7-5}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{7-5}x_{11-7}x_{16-11}x_{20-16} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{17-10}x_{20-17} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{18-10}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{12-9}x_{18-12}x_{20-18} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{13-9}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{10-5}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{10-5}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + x_{1-0}x_{2-1}x_{9-2}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + \\
& x_{1-0}x_{5-1}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19}
\end{aligned} \tag{14}$$



**Figura 14:** Representação da matriz 21x21,  $X^8$  (oitava potência de X), permitindo a visualização do elemento  $[X^8]_{20-0}$  que expressa a transição do <sup>152</sup>Eu para o estado fundamental do <sup>152</sup>Sm em oito passos.



Na **Figura 14**, a oitava potência da matriz contém somente um elemento distinto de zero (15). Suas duas parcelas, de oito fatores cada uma, indicam serem duas as possibilidades de transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  para o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em oito passos.

$$\begin{aligned}
 [X^8]_{20-0} = & x_{1-0}x_{2-1}x_{5-2}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19} + \\
 & x_{1-0}x_{3-1}x_{5-3}x_{9-5}x_{10-9}x_{13-10}x_{19-13}x_{20-19}
 \end{aligned}
 \tag{15}$$

A transição desde o estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  até o estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  pode, como resultado, ocorrer, portanto, por:

- cinco rotas de desintegração em duas etapas (para  $k=2$ ), estando o elemento matricial  $[X^2]_{20-0}$  representando as transições em cascata  $20 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 0$  e  $20 \rightarrow 19 \rightarrow 0$ .

- trinta e seis rotas de decaimento em três etapas ( $k=3$ ), estando o elemento matricial  $[X^3]_{20-0}$  denotando as transições em cascata  $20 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 7 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 8 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 9 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 9 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 6 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 6 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 14 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 14 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 14 \rightarrow 6 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 14 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 16 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 16 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 16 \rightarrow 6 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 16 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 16 \rightarrow 11 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 17 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 17 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 18 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 18 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 19 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ;  $20 \rightarrow 19 \rightarrow 5 \rightarrow 0$  e  $20 \rightarrow 19 \rightarrow 6 \rightarrow 0$ .

- setenta e quatro rotas de decaimento em quatro etapas ( $k=4$ ), estando o elemento matricial  $[X^4]_{20-0}$  representando as seguintes transições em cascata:  $20 \rightarrow 5 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 5 \rightarrow 3 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 7 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 7 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 8 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 9 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 9 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 9 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 10 \rightarrow 9 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 6 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 7 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 7 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 11 \rightarrow 8 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 8 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 9 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 12 \rightarrow 9 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 5 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 6 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 8 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 9 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 9 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 10 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 10 \rightarrow 5 \rightarrow 0$ ,  $20 \rightarrow 13 \rightarrow 10 \rightarrow 9 \rightarrow 0$ ,





20→19→13→9→5→3→1→0,

20→19→13→10→5→2→1→0,

20→19→13→10→5→3→1→0,

20→19→13→10→9→2→1→0,

20→19→13→10→9→5→1→0.

• duas rotas de decaimento em oito etapas ( $k=8$ ), estando o elemento matricial  $[X^8]_{20-0}$  denotando as seguintes transições em cascata: 20→19→13→10→9→5→2→1→0 e 20→19→13→10→9→5→3→1→0.

Estas rotas ou trajetórias de desintegração têm diferentes probabilidades (**Tabela 4**) que se podem determinar por meio de uma matriz de probabilidades de transição conforme se indica a seguir.

### 3.1.5 Matriz de probabilidades de transição

Para a formação das equações de taxa de contagem, deve-se construir também, de maneira similar a matriz de probabilidades de transição desde o  $^{152}\text{Eu}$ , substituindo os elementos  $x_{i-j}$  (diferentes de zero) da matriz  $21 \times 21$  anterior pelos dados de desintegração nuclear, deduzidos facilmente dos esquemas de decaimento padrões, disponíveis na literatura (Vanin *et al.*, 2004) [11]. São os valores de  $y_{n-i}$  e  $y_{i-j}$  das **Tabelas 1** (coluna 2) e **2** (coluna 4) designando, respectivamente, a probabilidade de captura com a transição do nível  $n$  ( $n = 20$ ) a um nível  $i$  e a probabilidade normalizada de transição entre dois níveis, do nível  $i$  ao nível  $j$  ( $j < i < 20$ ). Os elementos da matriz satisfazem as seguintes relações (16) (17) (ou seja, a soma dos componentes de uma linha, diferentes de zero, deve ser igual à unidade):

$$\sum_{j=0}^{i-1} y_{ij} = 1, \quad i = 1, \dots, n - 1 \quad (16)$$

$$\sum_{i=0}^{n-1} y_{ni} = 1. \quad (17)$$

O significado físico destas relações é que o  $i$ -ésimo nível excitado do  $^{152}\text{Sm}$  deve decair a um dos mais baixos, aplicando-se esta regra também ao estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$ , nível  $n = i = 20$ . De fato, os elementos  $y_{20-1}$ ,  $y_{20-2}$ ,  $y_{20-5}$ ,  $y_{20-7}$ ,  $y_{20-8}$ ,  $y_{20-9}$ ,  $y_{20-10}$ ,  $y_{20-11}$ ,  $y_{20-12}$ ,  $y_{20-13}$ ,  $y_{20-14}$ ,  $y_{20-15}$ ,  $y_{20-16}$ ,  $y_{20-17}$ ,  $y_{20-18}$  e  $y_{20-19}$  da última linha da matriz  $Y$ , representam as probabilidades das transições por captura de elétrons do  $^{152}\text{Eu}$  aos níveis 1752,5; 1507,8; 1063,9; 851,3; 833,2; 788,5; 640,4; 581,5; 502,6; 344,5; 294,9; 261,4; 224,4; 144,1; 117,1 e 105,2 keV do  $^{152}\text{Sm}$ , respectivamente.

O elemento matricial da matriz  $Y^k$  configurado na  $n$ -ésima linha (última linha) e primeira coluna,  $[Y^k]_{n-0}$ , representa a probabilidade de transição do núcleo pai ao estado fundamental do núcleo filho em  $k$  passos. Estes elementos da matriz devem cumprir a seguinte condição (18):

$$\sum_{k=1}^n [Y^k]_{n0} = 1 \quad (18)$$

Quer dizer, o núcleo pai tem 100% de probabilidade de transitar ao estado fundamental do núcleo filho, em até  $k = n$  passos. Por conseguinte, as probabilidades de transição do  $^{152}\text{Eu}$  ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  em 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7 e 8 passos estão dados pelos elementos matriciais  $[Y]_{20-0}$ ,  $[Y^2]_{20-0}$ ,  $[Y^3]_{20-0}$ ,  $[Y^4]_{20-0}$ ,  $[Y^5]_{20-0}$ ,  $[Y^6]_{20-0}$ ,  $[Y^7]_{20-0}$ , e  $[Y^8]_{20-0}$ , respectivamente (19), (20), (21), (22), (23), (24), (25) e (26).









probabilidades de detecção (ou não detecção) de toda energia dos fótons emitidos na transição do nível superior ao inferior. Por tanto, depois da determinação de todas as rotas de decaimento, é necessário encontrar este correspondente par, estritamente correlacionado, de consequências resultantes no detector. Cada par representando o **produto** de probabilidades de detecção (ou de não detecção) de certa combinação de fótons de energias determinadas (combinação a estabelecer a partir das rotas já identificadas) e a correspondente **soma** de energias passíveis de ser completamente depositadas no detector.

Conforme o diagrama de árvore da **Figuras 15 e 16**, cada transição de um nível a outro é um ponto de bifurcação, porque as consequências no detector, resultantes de uma transição podem ser diferentes. Como consequência das transições por captura de elétrons (do nível  $n$  ao nível  $j$ ), quanto à detecção de fótons, são possíveis os seguintes três casos alternativos: a detecção (com certa probabilidade e energia) de um fóton  $K_\alpha$ , de um  $K_\beta$  (emitidos em cada captura eletrônica) ou a ausência de detecção. Como o escopo no momento é apenas a escolha do ramo de decaimento e dos picos para aplicação do método pico-soma, somente raios X  $K_\alpha$  e  $K_\beta$  são considerados, enquanto que outros raios X característicos e radiações de *Bremsstrahlung* são negligenciados.

A cada detecção está associada uma probabilidade e uma energia depositada. Cada rota de decaimento em  $k$  passos tem  $3 \times 4^{k-1}$  pares de consequências resultantes no detector (**Tabela 5**). O número total de resultantes das 285 rotas de decaimento desde o estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  ao estado fundamental do  $^{152}\text{Sm}$  é 628092.

Representamos as probabilidades de detecção e absorção completa da energia de fótons  $K_\alpha$  e  $K_\beta$ , que resultam de capturas de elétrons com transições ao  $i$ -ésimo nível do  $^{152}\text{Sm}$ , por  $a_{n-i}$  e  $b_{n-i}$ , respectivamente, e as probabilidades de ausência de detecção destes fótons por  $q_{n-i}$ .

Observe-se que, no esquema modificado da **Figura 2**,  $n$  é igual a 20 no ramo do  $^{152}\text{Sm}$  e 16 no do  $^{153}\text{Gd}$ . A estas três probabilidades estão estritamente correlacionadas as energias  $E_{K_\alpha}$ ,  $E_{K_\beta}$  e 0, correspondentemente.  $E_{K_\alpha}$  e  $E_{K_\beta}$  são as energias dos fótons  $K_\alpha$  e  $K_\beta$ , respectivamente, e 0 corresponde a não detecção.

De maneira similar, quando tem lugar as transições do núcleo do  $^{152}\text{Sm}$  de um nível superior  $i$  a um inferior  $j$ , temos as seguintes quatro possibilidades: a detecção de um fóton  $K_\alpha$  ou um  $K_\beta$  (que se originam a partir de uma conversão interna), a detecção do fóton gama ou a ausência de detecção de qualquer fóton. As probabilidades correspondentes são representadas por  $a_{i-j}$ ,  $b_{i-j}$ ,  $\gamma_{i-j}$  e  $q_{i-j}$ . A estas quatro probabilidades

estão estritamente correlacionadas às energias  $E_{K\alpha}$ ,  $E_{K\beta}$ ,  $E\gamma_{i-j}$  e 0, respectivamente.  $E\gamma_{ij}$  é a energia do fóton gama na transição  $i \rightarrow j$ .

Ou seja, para determinar todos os pares resultantes por rota de decaimento, cada elemento matricial  $x_{i-j}$  é substituído por vetores-linha de 3 ou 4 elementos cada. Cada um está associado com os elementos matriciais  $z_{i-j}$  de uma matriz Z, cujos elementos contêm as energias depositadas no detector correspondentes às probabilidades de detecção  $a_{i-j}; b_{i-j}; \gamma_{i-j}; q_{i-j}$ .

Para captura eletrônica ( $n = 20$ ):

$$x_{20i} = [a_{n-i}; b_{n-i}; q_{n-i}] \quad (27)$$

$$z_{20i} = [E_{K\alpha}; E_{K\beta}; 0] \quad (28)$$

ou seja:

$$x_{20-1} = [a_{20-1}; b_{20-1}; q_{20-1}]$$

$$z_{20-1} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-2} = [a_{20-2}; b_{20-2}; q_{20-2}]$$

$$z_{20-2} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-5} = [a_{20-5}; b_{20-5}; q_{20-5}]$$

$$z_{20-5} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-7} = [a_{20-7}; b_{20-7}; q_{20-7}]$$

$$z_{20-7} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-8} = [a_{20-8}; b_{20-8}; q_{20-8}]$$

$$z_{20-8} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-9} = [a_{20-9}; b_{20-9}; q_{20-9}]$$

$$z_{20-9} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-10} = [a_{20-10}; b_{20-10}; q_{20-10}]$$

$$z_{20-10} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-11} = [a_{20-11}; b_{20-11}; q_{20-11}]$$

$$z_{20-11} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-12} = [a_{20-12}; b_{20-12}; q_{20-12}]$$

$$z_{20-12} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-13} = [a_{20-13}; b_{20-13}; q_{20-13}]$$

$$z_{20-13} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-14} = [a_{20-14}; b_{20-14}; q_{20-14}]$$

$$z_{20-14} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-15} = [a_{20-15}; b_{20-15}; q_{20-15}]$$

$$z_{20-15} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-16} = [a_{20-16}; b_{20-16}; q_{20-16}]$$

$$z_{20-16} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-17} = [a_{20-17}; b_{20-17}; q_{20-17}]$$

$$z_{20-17} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-18} = [a_{20-18}; b_{20-18}; q_{20-18}]$$

$$z_{20-18} = [39,9; 45,9; 0]$$

$$x_{20-19} = [a_{20-19}; b_{20-19}; q_{20-19}]$$

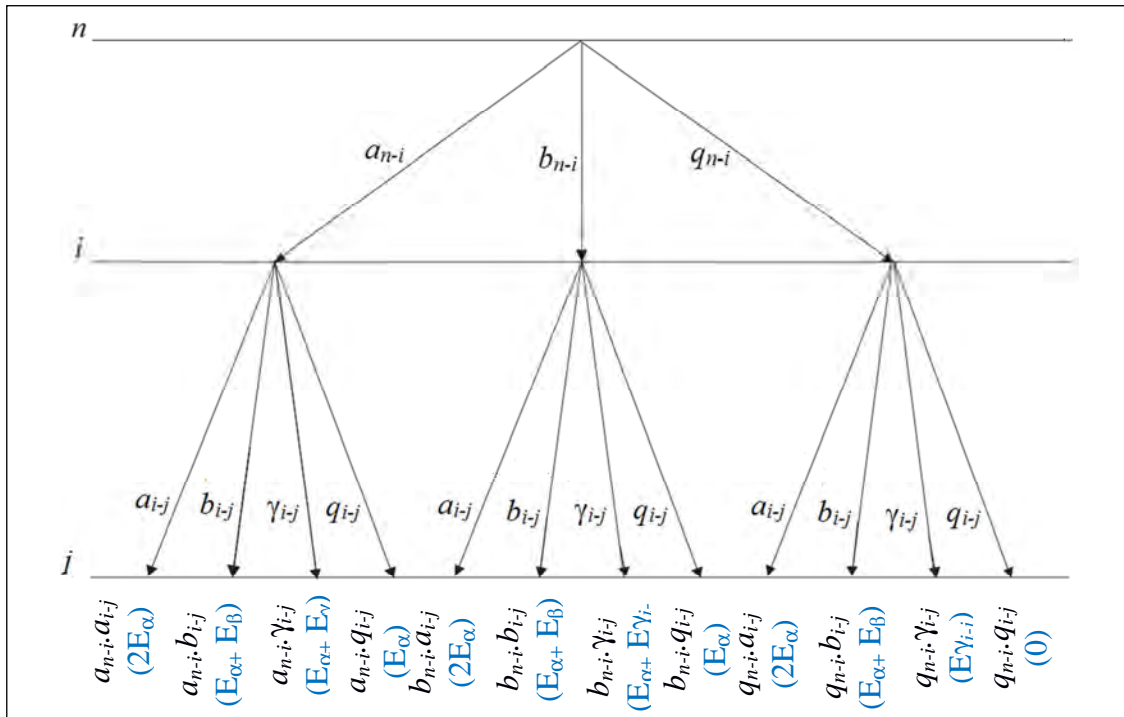
$$z_{20-19} = [39,9; 45,9; 0]$$

Nas transições gama:

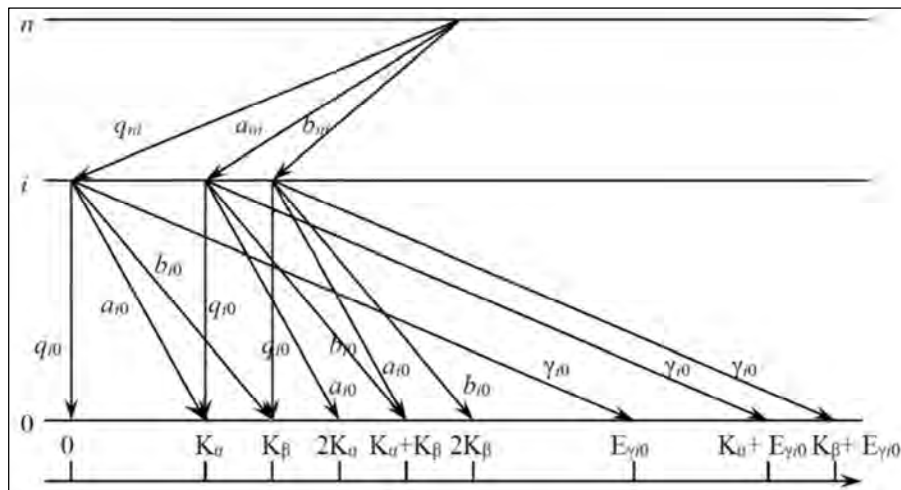
$$x_{i-j} = [a_{i-j}; b_{i-j}; \gamma_{i-j}; q_{i-j}] \quad (29)$$

$$z_{i-j} = [E_{K\alpha}; E_{K\beta}; E\gamma_{i-j}; 0] \quad (30)$$

onde  $a$ ,  $b$  e  $\gamma$  representam as probabilidades de detecção dos fótons X  $K_{\alpha}$ , X  $K_{\beta}$  e  $\gamma$ , respectivamente, e  $q$  é a probabilidade de não detecção.



**Figura 15:** Conseqüências resultantes (no detector) de uma rota de decaimento: probabilidades de detecção (energias depositadas no detector). Transições  $n \rightarrow i$  podem ser seguidas por um de três eventos: por detecção de  $K_\alpha$ ,  $K_\beta$  ou sem qualquer detecção. Transições de  $i \rightarrow j$  ( $j < i$ ) podem ser seguidas por quatro eventos: a detecção dos fótons  $K_\alpha$ ,  $K_\beta$ ,  $\gamma$  ou pela ausência de detecção. Estas possibilidades são combinadas criando, neste caso de uma rota de dois passos,  $3 \times 4 = 12$  resultantes ou desfechos. As probabilidades correspondentes devem ser multiplicadas, e as energias relacionadas devem ser somadas, usando os operadores M e S, respectivamente.



**Figura 16:** Os produtos das probabilidades de detecção  $a_{n-i}$ ,  $b_{n-i}$  e  $q_{n-i}$  pelas probabilidades de detecção  $a_{i-j}$ ,  $b_{i-j}$ ,  $\gamma_{i-j}$  e  $q_{i-j}$  para  $i > j$  correspondem distintas energias depositadas no detector, como  $K_\alpha$  ( $E_{K_\alpha}$ ),  $K_\beta$  ( $E_{K_\beta}$ ),  $E_{\gamma_{i-0}}$  ( $E_{\gamma_{i-j}}$ ) e 0, ou somas delas. Note-se que a mesma energia depositada no detector pode ser consequência resultante de diferentes combinações de probabilidades de deposição. Neste exemplo, com transições ao estado fundamental por uma rota ( $n \rightarrow i \rightarrow 0$ ) de dois passos (resultando 12 probabilidades de detecção), em três casos, combinações distintas correspondem a uma mesma energia, resultando ao cabo somente 9 energias distintas.

### 3.1.7 Expressões teóricas de taxa de contagem

Uma *equação de taxa de contagem* contém as probabilidades de detecção (ou de não detecção) de fótons que resultem em dada energia. Como estas probabilidades contêm, ademais de parâmetros atômicos e nucleares conhecidos (Tabelas 1-3), valores inicialmente desconhecidos (as eficiências de detecção, total e de pico), as expressões de taxa de contagem contêm as probabilidades, em geral, em forma literal ou não explícita ( $a_{i-j}$ ,  $b_{i-j}$ ,  $\gamma_{i-j}$ ,  $q_{i-j}$ , por exemplo). O **Apêndice A** apresenta as definições físicas dessas probabilidades de detecção e não detecção.

A resultante de uma rota de decaimento caracteriza-se por uma lista de probabilidades de detecção (ou não detecção) dos fótons envolvidos (com deposição de todas as respectivas energias) e por uma correspondente lista de valores das energias depositadas no detector. A energia depositada e a probabilidade desse evento têm a mesma posição nas listas correspondentes. Todos os resultados possíveis ao longo da trajetória devem ter-se em conta **multiplicando** suas listas de probabilidades e **somando** suas listas de energia. Cada energia final resultante  $e_i$ , correspondendo a certo produto  $p_i$ , de probabilidades de detecção, corresponde a um possível pico no espectro, dando lugar a uma equação de taxa de contagem onde o número de contagens do pico (de energia  $e_i$ ) será igual ao produto da atividade da fonte (incógnita) pela soma das parcelas com os produtos,  $p_i$ , que representam as probabilidades de deposição da energia  $e_i$  no detector. O número de pares  $p_i - e_i$  é, como já exposto,  $3 \times 4^{k-1}$ , onde  $k$  é o número de passos para a transição do estado fundamental do  $^{152}\text{Eu}$  ao do  $^{152}\text{Sm}$ .

A substituição de todos os elementos matriciais que compõem as diversas rotas de decaimento (a primeira coluna da **Tabela 5**) pelos vetores-linha (27 e 29) e sua **multiplicação** mediante a aplicação de um operador  $M$  dão como resultado novas listas de probabilidades. Estas listas podem então reunir-se na lista unificada,  $IP$  (31),

$$IP = \{p_1, p_2, \dots, p_{628092}\} \quad (31)$$

onde  $p_i$  ( $i = 1, 2, \dots, 628092$ ) representa a probabilidade total do  $i$ -ésimo resultado.

Um operador  $S$  deve aplicar-se na mesma ordem às listas  $z_{i-j}$  (28 e 30) e as listas obtidas se agruparão na lista unificada,  $IE$ , (32):

$$IE = \{e_1, e_2, \dots, e_{628092}\}, \quad (32)$$

onde  $e_i$  representa a energia depositada no detector no  $i$ -ésimo resultado.

Estas quantidades têm a mesma posição nas listas correspondentes e o agrupamento de elementos em  $IP$  pode-se realizar de acordo com as mesmas deposições de energia. Entretanto a mesma energia depositada no detector pode ser consequência resultante de diferentes combinações de probabilidades de deposição (**Figura 16**) e também de diferentes rotas de decaimento. Se reduzirmos a lista  $IE$  agrupando as mesmas energias, obtém-se uma nova lista de 160 (desde 0 até 1.809,09 keV) elementos diferentes,  $IE_r$ , apresentada na **Tabela 6**.

**Tabela 6:** A probabilidade de detecção (ou de não detecção) dos fótons indicados determina uma lista de 160 energias resultantes (em keV).

---

0; 40; 46; 80; 86; 92; 121,78; 148,01; 161,78; 165,69; 167,78; 201,78; 207,6; 207,78;
212,57; 244,7; 251,63; 275,45; 284,7; 285,98; 290,7; 291,63; 295,94; 316,2; 324,7;
329,42; 330,7; 335,94; 336,7; 340,4; 341,94; 366,48; 406,48; 412,48; 416,05; 417,72;
443,97; 456,05; 457,72; 483,97; 488,68; 489,97; 493,51; 562,93; 563,99; 565,75;
566,44; 603,99; 604,09; 605,75; 606,44; 609,99; 610,46; 656,49; 674,68; 685,77;
686,61; 688,67; 714,68; 719,35; 728,67; 733,38; 734,67; 759,35; 764,9; 765,35;
768,67; 768,95; 808,95; 810,45; 839,36; 841,13; 841,58; 850,45; 867,38; 881,13;
881,58; 901,18; 907,38; 913,38; 919,34; 926,32; 941,18; 947,18; 947,38; 953,38;
958,63; 959,34; 963,39; 964,08; 989,16; 1004,08; 1005,28; 1010,08; 1022,96; 1029,16;
1035,16; 1041,16; 1044,08; 1045,28; 1048,1; 1050,08; 1051,28; 1084; 1085,84;
1112,08; 1125,84; 1127,06; 1131,84; 1152,08; 1158,08; 1170,93; 1192,08; 1198,08;
1212,95; 1233,86; 1249,94; 1252,95; 1258,95; 1273,86; 1279,86; 1289,94; 1292,78;
1295,94; 1332,78; 1334,73; 1363,77; 1371,72; 1374,73; 1380,73; 1408,01; 1448,01;
1454,01; 1457,65; 1488,01; 1494,01; 1497,65; 1503,65; 1528,11; 1529,79; 1537,65;
1543,65; 1568,11; 1569,79; 1574,11; 1575,79; 1579,43; 1608,11; 1608,36; 1619,43;
1625,43; 1635,2; 1647,41; 1649,89; 1687,41; 1689,89; 1695,89; 1756,98; 1769,09;
1809,09.

---

As energias na lista  $lE_r$  determinam todas as possíveis posições dos picos em um espectro a analisar. As equações de taxa de contagem (de picos de dada energia) se determinam somando todos os elementos da lista  $lP$  com a mesma energia depositada e multiplicando pela atividade da fonte,  $R$ . O número total de equações de taxa de contagem para o  $^{152}\text{Eu}$  chegaria a 1.440, porém muitos dos 1.439 picos têm taxas de contagem insignificantes. As incógnitas nestas equações são as eficiências, total e de pico, para as energias dadas nas **Tabelas 2 e 3**, e a atividade da fonte medida.

O número de picos registrados cuja área líquida poderia ser determinada no espectro medido de fontes de  $^{152}\text{Eu}$  foi 160. Um total de 18 picos de energia de absorção total (FEP), bem definidos e com pequenas incertezas na determinação das áreas líquidas, poderiam ser escolhidos para processamento posterior, sendo formada a seguinte lista de energias: 40,0; 46,0; 121,78; 244,7; 344,28; 411,12; 443,96; 563,99; 688,32; 778,9; 867,38; 964,08; 1085,84; 1089,74; 1112,08; 1212,95; 1299,12; 1408,01.

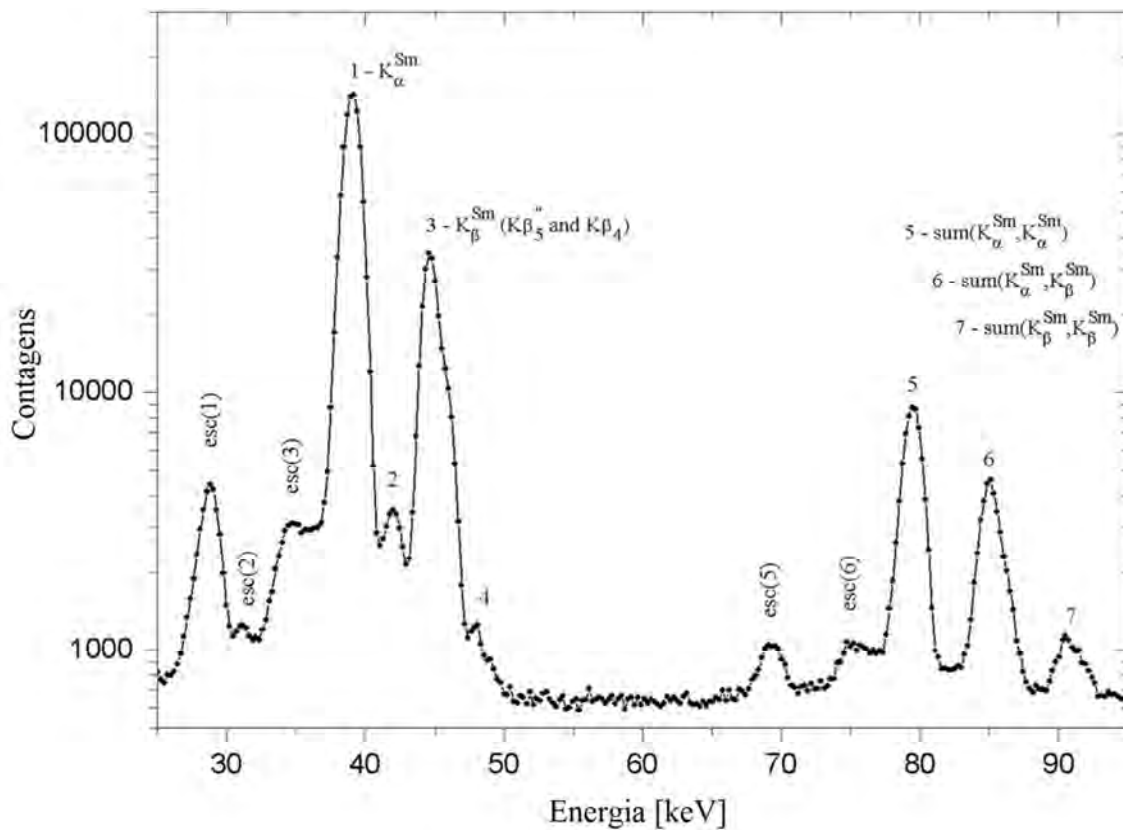
### 3.1.8 Recapitulação do método DMM

O procedimento para se obter as expressões teóricas para taxas de contagem de picos consiste dos seguintes passos: **1-** formar a matriz simbólica  $X$ , aplicando-a para a identificação de todos os caminhos de desintegração; **2-** formar a matriz de probabilidade  $Y$ , usando dados conhecidos do esquema de desintegração; **3-** substituir o elemento matricial  $x_{ij}$  por um vetor-linha que contém 4 (ou 3) elementos (probabilidades de detectar fótons  $K_\alpha$ ,  $K_\beta$  e  $\gamma$ , e de não detectar fótons); **4-** formar o vetor-linha  $z_{i-j}$  que contém as energias correspondentes depositadas no detector; **5-** proceder à multiplicação direta de matrizes  $x_{ij}$  ao longo de todas as rotas de decaimento; **6-** proceder à soma direta de matrizes  $z_{i-j}$  ao longo de todas as rotas de decaimento e **7-** agrupar e somar as probabilidades de detecção para a mesma energia (formando as equações teóricas de taxa de contagem de pico).

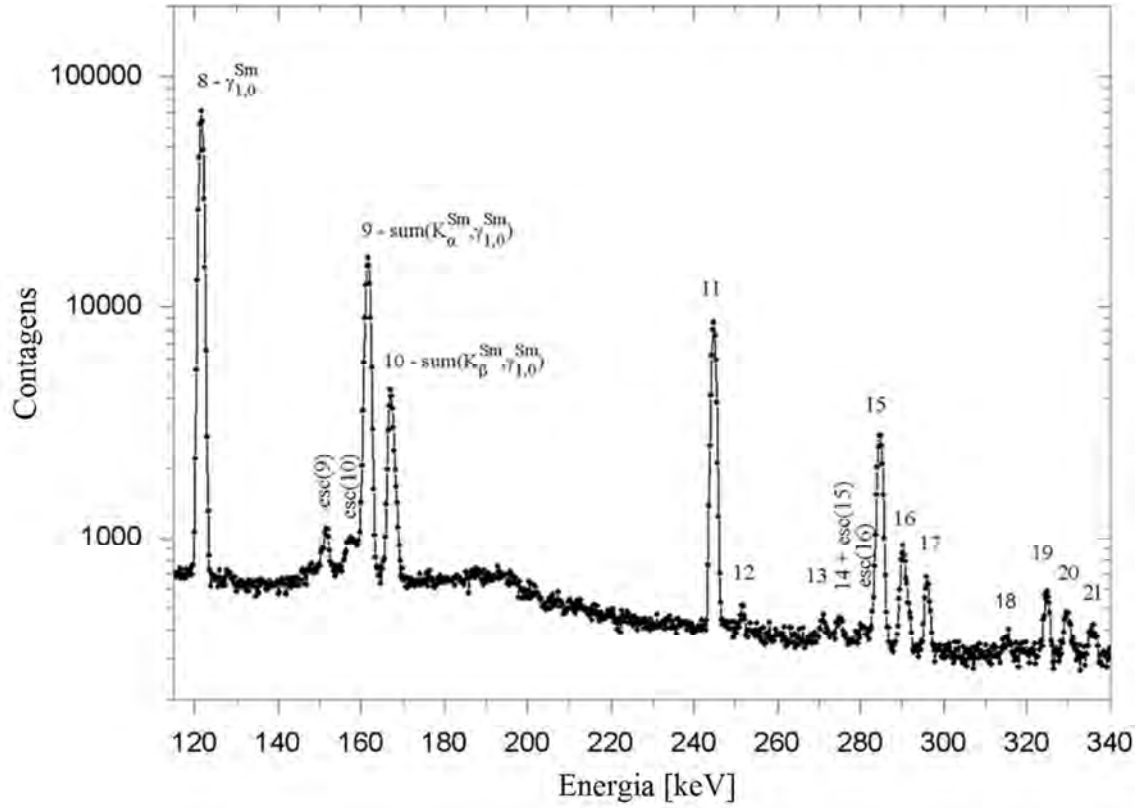
Uma orientação para a construção de uma planilha de cálculo Excel representando a árvore de consequências resultantes no detector no caso do  $^{133}\text{Ba}$  consta no trabalho já mencionado, apresentado no Congresso Regional IRPA em Havana, (FERREIRA FILHO, 2018b) [60]. Alternativamente, pode-se usar um programa em FORTRAN disponível mediante solicitação.

### 3.1.9 Escolha dos picos para a aplicação do método pico-soma

Conforme mencionado, chegou a 160 o número de picos, cuja área líquida poderia ser eventualmente determinada na medição de um espectro de fontes de  $^{152}\text{Eu}$ , com um grande número de picos-soma. No entanto, podemos reproduzir as expressões (33), (34), (35), (36) e (37), algumas obtidas também por JORDANOV *et al.*, (2016) [12] e por NOVKOVIĆ *et al.*, (2016) [68], para os picos que mais nos interessam no presente estudo, marcados como pico 1, 3, 8 e 9 nas **Figuras 17 e 18** (adaptadas de JORDANOV (2016) [12]), sendo 1, 3 e 8 picos de energia de absorção total, bem definidos e com pequenas incertezas na determinação da área líquida.



**Figura 17:** Primeira parte do espectro de energia do  $^{152}\text{Eu}$  observado com um detector de HPGe



**Figura 18:** Espectro de energia do  $^{152}\text{Eu}$  de 120 a 340 keV

Além da atividade R, as equações de taxa de contagem contêm as probabilidades  $a$ ,  $b$  e  $\gamma$  de detecção de fótons  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  e gama, respectivamente, ou de não detecção,  $q$ .

Para o fotopico (marcado como 1 na **Figura 17**) de 39,9 keV de energia (raios X  $K_{\alpha}$  do Sm), a equação de taxa de contagem (33) é formada basicamente apenas de probabilidades,  $a$ , de detectar fótons  $K_{\alpha}$  e de probabilidades,  $q$ , de não detecção:

$$\begin{aligned}
 n_{(39,9)} = & (a_{20-13}q_{13-1}q_{1-0} + a_{20-10}q_{10-1}q_{1-0} + a_{20-9}q_{9-0} + a_{20-9}q_{9-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-1}a_{1-0} + \\
 & q_{20-10}q_{10-1}a_{1-0} + q_{20-9}q_{9-1}a_{1-0} + a_{20-10}q_{10-2}q_{2-1}q_{1-0} + a_{20-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-9}q_{9-0} \\
 & + a_{20-13}q_{13-9}q_{9-1}q_{1-0} + q_{20-10}q_{10-2}q_{2-1}a_{1-0} + a_{20-14}q_{14-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-1}a_{1-0} + \\
 & a_{20-5}q_{5-1}q_{1-0} + a_{20-2}q_{2-1}q_{1-0} + a_{20-14}q_{14-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-9}q_{9-1}a_{1-0} + a_{20-12} \\
 & q_{12-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-14}q_{14-2}q_{2-1}a_{1-0} + a_{20-5}q_{5-0} + q_{20-5}q_{5-1}a_{1-0} + a_{20-16}q_{16-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-2}q_{2-1}a_{1-0} + q_{20-10}q_{10-2}a_{2-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-10}q_{10-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-8}q_{8-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-14}q_{14-1}a_{1-0} + a_{20-16}q_{16-9}q_{9-0} + a_{20-16}q_{16-9}q_{9-1}q_{1-0} + a_{20-11}q_{11-2}q_{2-1}q_{1-0} + \\
 & a_{20-12}q_{12-1}q_{1-0} + a_{20-5}q_{5-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-12}q_{12-2}q_{2-1}a_{1-0} + a_{20-9}q_{9-2}q_{2-1}q_{1-0} + \\
 & a_{20-11}q_{11-0} + q_{20-16}q_{16-1}a_{1-0} + q_{20-13}q_{13-10}q_{10-1}a_{1-0} + a_{20-7}q_{7-2}q_{2-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-14}q_{14-2}a_{2-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-8}q_{8-1}a_{1-0} + q_{20-16}q_{16-9}q_{9-1}a_{1-0} + a_{20-7}q_{7-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-11}q_{11-2}q_{2-1}a_{1-0} + q_{20-12}q_{12-1}a_{1-0} + q_{20-5}q_{5-2}q_{2-1}a_{1-0} + a_{20-13}q_{13-6}q_{6-0} + \\
 & a_{20-8}q_{8-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-8}q_{8-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-9}q_{9-2}q_{2-1}a_{1-0} + q_{20-2}a_{2-1}q_{1-0} + \\
 & a_{20-11}q_{11-6}q_{6-0} + a_{20-16}q_{16-10}q_{10-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-6}q_{6-1}q_{1-0} + a_{20-13}q_{13-10}q_{10-2} \\
 & q_{2-1}q_{1-0} + a_{20-11}q_{11-6}q_{6-1}q_{1-0} + q_{20-12}q_{12-2}a_{2-1}q_{1-0}) R
 \end{aligned} \tag{33}$$



A equação de taxa de contagem (34) para o fotopico (marcado como 3 na **Figura 17**) de 45,9 keV de energia (raios X K do Sm) é formada basicamente apenas de probabilidades,  $b$ , de detectar fótons  $K_{\beta}$  e de probabilidades,  $q$ , de não detecção:

$$\begin{aligned}
 n_{(45,9)} = & (b_{20-13}q_{13-1}q_{1-0} + b_{20-10}q_{10-1}q_{1-0} + b_{20-9}q_{9-0} + b_{20-9}q_{9-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-1}b_{1-0} + \\
 & q_{20-10}q_{10-1}b_{1-0} + q_{20-9}q_{9-1}b_{1-0} + b_{20-10}q_{10-2}q_{2-1}q_{1-0} + b_{20-1}q_{1-0} + b_{20-13} \\
 & q_{13-9}q_{9-0} + b_{20-13}q_{13-9}q_{9-1}q_{1-0} + q_{20-10}q_{10-2}q_{2-1}b_{1-0} + b_{20-14}q_{14-2}q_{2-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-1}b_{1-0} + b_{20-5}q_{5-1}q_{1-0} + b_{20-2}q_{2-1}q_{1-0} + b_{20-14}q_{14-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-9}q_{9-1}b_{1-0} \\
 & + b_{20-12}q_{12-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-14}q_{14-2}q_{2-1}b_{1-0} + b_{20-5}q_{5-0} + q_{20-5}q_{5-1}b_{1-0} + \\
 & b_{20-16}q_{16-1}q_{1-0} + q_{20-2}q_{2-1}b_{1-0} + q_{20-10}q_{10-2}b_{2-1}q_{1-0} + b_{20-13}q_{13-10}q_{10-1}q_{1-0} \\
 & + b_{20-13}q_{13-8}q_{8-1}q_{1-0} + q_{20-14}q_{14-1}b_{1-0} + b_{20-16}q_{16-9}q_{9-0} + b_{20-16}q_{16-9}q_{9-1}q_{1-0} + \\
 & b_{20-11}q_{11-2}q_{2-1}q_{1-0} + b_{20-12}q_{12-1}q_{1-0} + b_{20-5}q_{5-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-12}q_{12-2}q_{2-1}b_{1-0} \\
 & + b_{20-9}q_{9-2}q_{2-1}q_{1-0} + b_{20-11}q_{11-0} + q_{20-16}q_{16-1}b_{1-0} + q_{20-13}q_{13-10}q_{10-1}b_{1-0} + \\
 & b_{20-7}q_{7-2}q_{2-1}q_{1-0} + q_{20-14}q_{14-2}b_{2-1}q_{1-0} + q_{20-13}q_{13-8}q_{8-1}b_{1-0} + q_{20-16}q_{16-9} \\
 & q_{9-1}b_{1-0} + b_{20-7}q_{7-1}q_{1-0} + q_{20-11}q_{11-2}q_{2-1}b_{1-0} + q_{20-12}q_{12-1}b_{1-0} + q_{20-5} \\
 & q_{5-2}q_{2-1}b_{1-0} + b_{20-13}q_{13-6}q_{6-0} + b_{20-8}q_{8-1}q_{1-0} + b_{20-13}q_{13-8}q_{8-2}q_{2-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-9}q_{9-2}q_{2-1}b_{1-0} + q_{20-2}b_{2-1}q_{1-0} + b_{20-11}q_{11-6}q_{6-0} + b_{20-16}q_{16-10}q_{10-1}q_{1-0} + \\
 & b_{20-13}q_{13-6}q_{6-1}q_{1-0} + b_{20-13}q_{13-10}q_{10-2}q_{2-1}q_{1-0} + b_{20-11}q_{11-6}q_{6-1}q_{1-0} + \\
 & q_{20-12}q_{12-2}b_{2-1}q_{1-0}) R
 \end{aligned} \tag{34}$$

A equação de taxa de contagem (35) para o fotopico (marcado como 8 na **Figura 18**) de 121,8 keV de energia,  $\gamma_{1-0}$  (Sm) é formada basicamente apenas da probabilidade,  $\gamma_{1-0}$ , de detectar fótons gama dessa transição e de probabilidades,  $q$ , de não detecção:

$$\begin{aligned}
 n_{(121,8)} = & (q_{20-13}q_{13-1} + q_{20-10}q_{10-1} + q_{20-9}q_{9-1} + q_{20-10}q_{10-2}q_{2-1} + q_{20-1} + q_{20-13}q_{13-9}q_{9-1} \\
 & + q_{20-14}q_{14-2}q_{2-1} + q_{20-5}q_{5-1} + q_{20-2}q_{2-1} + q_{20-14}q_{14-1} + q_{20-12}q_{12-2}q_{2-1} + \\
 & q_{20-16}q_{16-1} + q_{20-13}q_{13-10}q_{10-1} + q_{20-13}q_{13-8}q_{8-1} + q_{20-16}q_{16-9}q_{9-1} + q_{20-11}q_{11-2} \\
 & q_{2-1} + q_{20-12}q_{12-1} + q_{20-5}q_{5-2}q_{2-1} + q_{20-9}q_{9-2}q_{2-1} + q_{20-7}q_{7-2}q_{2-1} + q_{20-7}q_{7-1} \\
 & + q_{20-16}q_{16-10}q_{10-1} + q_{20-13}q_{13-8}q_{8-2}q_{2-1} + q_{20-8}q_{8-1} + q_{20-13}q_{13-6}q_{6-1} + \\
 & q_{20-13}q_{13-10}q_{10-2}q_{2-1} + q_{20-11}q_{11-6}q_{6-1}) \gamma_{1-0} R
 \end{aligned} \tag{35}$$

A equação de taxa de contagem (36) para o pico-soma (marcado como 9 na **Figura 18**) com energia de 161,7 keV = 121,8 ( $\gamma_{1-0}$  do Sm) + 39,9 (raios X  $K_{\alpha}$  do Sm) é formada basicamente apenas da probabilidade,  $\gamma_{1-0}$ , de detectar fótons gama dessa transição, de probabilidades,  $a$ , de detectar fótons  $K_{\alpha}$ , e de probabilidades,  $q$ , de não detecção:

$$n_{(161,7)} = (a_{20-13}q_{13-1} + a_{20-10}q_{10-1} + a_{20-9}q_{9-1} + a_{20-10}q_{10-2}q_{2-1} + a_{20-1} + a_{20-13}q_{13-9}q_{9-1} + a_{20-14}q_{14-2}q_{2-1} + a_{20-5}q_{5-1} + a_{20-2}q_{2-1} + a_{20-14}q_{14-1} + a_{20-12}q_{12-2}q_{2-1} + a_{20-16}q_{16-1} + q_{20-10}q_{10-2}a_{2-1} + a_{20-13}q_{13-10}q_{10-1} + a_{20-13}q_{13-8}q_{8-1} + a_{20-16}q_{16-9}q_{9-1} + a_{20-11}q_{11-2}q_{2-1} + a_{20-12}q_{12-1} + a_{20-5}q_{5-2}q_{2-1} + a_{20-9}q_{9-2}q_{2-1} + a_{20-7}q_{7-2}q_{2-1} + q_{20-14}q_{14-2}a_{2-1} + a_{20-7}q_{7-1} + a_{20-8}q_{8-1} + a_{20-13}q_{13-8}q_{8-2}q_{2-1} + q_{20-2}a_{2-1} + a_{20-16}q_{16-10}q_{10-1} + a_{20-13}q_{13-6}q_{6-1} + a_{20-13}q_{13-10}q_{10-2}q_{2-1} + a_{20-11}q_{11-6}q_{6-1} + q_{20-12}q_{12-2}a_{2-1}) \gamma_{1-0} R \quad (36)$$

A equação de taxa de contagem (37) para o pico-soma (marcado como 10 na **Figura 18**) com energia de 167,7 keV = 121,8 ( $\gamma_{1-0}$  do Sm) + 45,9 (raios X  $K_{\beta}$  do Sm) é formada basicamente apenas da probabilidade,  $\gamma_{1-0}$ , de detectar fótons gama dessa transição, de probabilidades,  $b$ , de detectar fótons  $K_{\beta}$ , e de probabilidades,  $q$ , de não detecção:

$$n_{(167,7)} = (b_{20-1} + b_{20-9}q_{9-1} + b_{20-10}q_{10-2}q_{2-1} + q_{20-10}b_{10-2}q_{2-1} + q_{20-10}q_{10-2}b_{2-1} + b_{20-14}q_{14-2}q_{2-1} + b_{20-14}q_{14-2}b_{2-1}) \gamma_{1-0} R \quad (37)$$

$R$  representa a atividade da fonte e  $a$ ,  $b$ ,  $\gamma$  e  $q$  são as probabilidades correspondentes de detecção (ou não detecção) de um nível mais alto para um nível mais baixo.

Essas probabilidades são definidas por parâmetros atômicos e nucleares conhecidos e pelas eficiências de fotopico e total. Como os parâmetros nucleares e atômicos são conhecidos e tabelados, os únicos valores desconhecidos nas expressões de  $a_{n-i}$ ,  $b_{n-i}$  e  $q_{n-i}$  ou  $a_{i-j}$ ,  $b_{i-j}$ ,  $\gamma_{i-j}$  e  $q_{i-j}$  (NOVOKOVIC *et al.*, 2007a) [13]; (NADDERD *et al.*, 2012) [66], além da atividade, são os das respectivas eficiências, total e de pico, que até terminam sendo canceladas na dedução da expressão utilizada pelo método pico-soma.

Observando as equações acima, é possível entender o porquê dos picos mencionados ( $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  e  $\gamma_{1-0}$  do  $^{152}\text{Sm}$ ) terem sido escolhidos para a aplicação do método pico-soma, uma vez que sua formação não sofre influência significativa de outros.

De fato, como já mencionado, para o pico correspondente à energia do raio-X  $K_{\alpha}$  do  $^{152}\text{Sm}$  (39,9 keV), a taxa de contagem depende apenas das probabilidades,  $a$ , de detectar fótons  $K_{\alpha}$  e das probabilidades,  $q$ , de não detectar. O mesmo para o pico correspondente ao raio-X  $K_{\beta}$  do  $^{152}\text{Sm}$  (45,9 keV), cuja taxa de contagem depende apenas das probabilidades,  $b$ , de detectar fótons  $K_{\beta}$  e das probabilidades,  $q$ , de não

detecção. Para o pico gama de 121,8 keV, a taxa de contagem depende apenas da probabilidade  $\gamma_{1-0}$  de detectar o gama e das probabilidades,  $q$ , de não detecção. Para os picos-soma, a taxa de contagem depende apenas das probabilidades dos fótons relacionados e das probabilidades,  $q$ , de não detectar nenhum desses fótons.

No Apêndice B (Tabela 4) do trabalho publicado na *Applied Radiation and Isotopes* (FERREIRA FILHO *et al.*, 2018a) [14] se apresentou, a título ilustrativo, os picos de energia que podem ser formados com a participação das energias  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  e/ou  $\gamma_{1-0}$  do  $^{152}\text{Sm}$ , quando completamente depositadas no detector (NOVKOVIĆ *et al.*, 2016) [68].

### 3.2 Detalhes experimentais

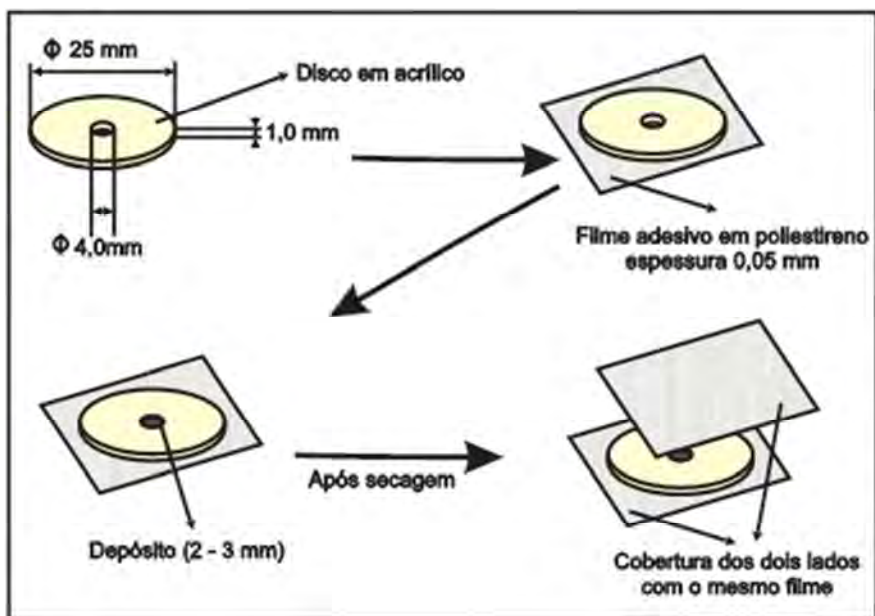
A solução de  $^{152}\text{Eu}$  foi obtida diluindo-se uma solução padronizada pela câmara de ionização previamente calibrada para o  $^{152}\text{Eu}$  com uma solução rastreável à comparação-chave do BIPM, CCRI(II)-k2.Eu-152, que ocorreu em 1999.

Na metrologia de radionuclídeos, as fontes são preparadas para medições de atividade aplicando-se um procedimento de pesagem diferencial para a amostragem de uma solução-mãe. Em consequência, a concentração de atividade, dada em Bq por unidade de massa, depende diretamente de grandezas físicas, métodos e práticas envolvidas na determinação da massa.

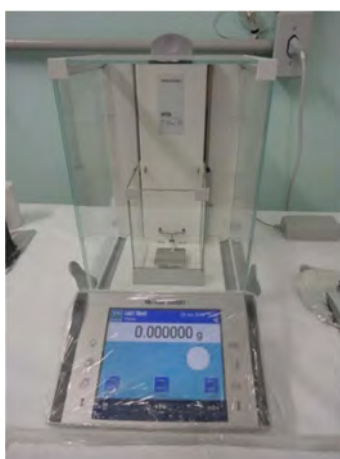
Seis fontes foram preparadas em geometria pontual com atividades variando de 1 a 5 kBq. As fontes foram preparadas com o auxílio de um picnômetro (dispositivo conta-gotas), depositando-se gotas de solução do radionuclídeo em um filme de poliestireno, com espessura de 0,05 mm, fixado em um anel de acrílico. O anel possui diâmetro externo de 25 mm, diâmetro interno de 4 mm e 1 mm de espessura. Depois de secas, as fontes foram cobertas com o mesmo filme de poliestireno. A **Figura 19** ilustra o esquema de montagem das fontes. As massas das fontes foram determinadas por gravimetria, seguindo o método de pesagem diferencial utilizando uma balança analítica METTLER TOLEDO modelo AX205 ou MT-5 (**Figura 20**) no laboratório de preparação de fontes em condições ambientais de temperatura entre 19,0 ° C e 21,0 ° C, umidade relativa do ar entre 49% e 51% e pressão entre 1010 e 1020 hPa. A partir dessas condições ambientais, a correção do empuxo (*buoyancy correction*) foi calculada

segundo LOURENÇO e BOBIN (2015) [70]. O valor obtido para a correção do empuxo foi de 1,001048, aplicado para a massa de cada fonte.

As seis fontes puntiformes de  $^{152}\text{Eu}$  foram preparadas com baixa atividade para evitar o efeito empilhamento (*pile-up*) que pode introduzir erro no resultado final. As fontes foram medidas em aproximadamente vinte e quatro horas cada. A radiação de fundo foi medida durante um período de quarenta e oito horas.

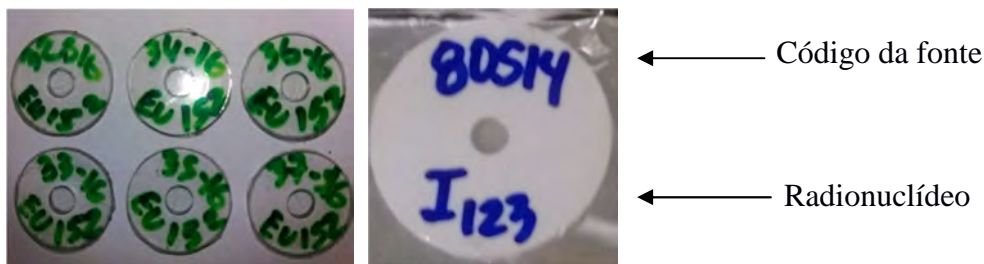


**Figura 19:** Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes (adaptado de DE OLIVEIRA, 2012 [30])



**Figura 20:** Balança utilizada na confecção de fontes (Mettler e Toledo)

A **Figura 21** apresenta exemplos genéricos de fontes puntiformes confeccionadas para a finalidade de calibração.



**Figura 21:** Fontes puntiformes para padronização absoluta

Os espectros das fontes puntiformes de  $^{152}\text{Eu}$  foram registrados em geometria próxima com um espectrômetro de germânio, que consiste de um detector HPGe Canberra X-Planar e um analisador multicanal (**Figura 22**). Este tipo de detector possui uma ampla faixa de energia e uma eficiência relativa de 20%, o que permite a detecção de fótons  $K\alpha$  e  $K\beta$  com alta eficiência.

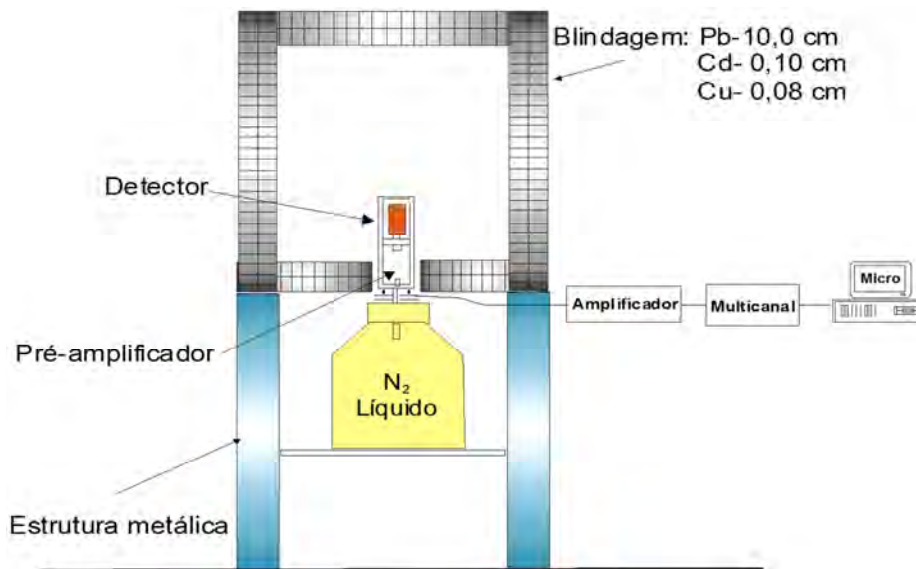


**Figura 22:** Detector de HPGe tipo planar.

A eletrônica específica associada é dada por:

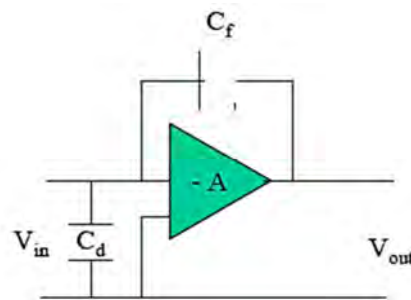
- Pré-amplificador sensível à carga CANBERRA<sup>®</sup> SÉRIE 30-T65A;
- Amplificador ORTEC<sup>®</sup> MODELO 572;
- Um analisador multicanal (MCA) ORTEC<sup>®</sup> MODELO 927;
- NIN BIM ORTEC modelo 4001;
- Fonte HV ORTEC<sup>®</sup> modelo 459;
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO;
- Blindagem correspondente de acordo com a **Figura 23**.

A blindagem utilizada é composta por blocos de chumbo juntamente com folhas de Cádmio e Cobre formando um volume livre interno de 1 m<sup>3</sup>, isolando o sistema fonte-detector, a fim de garantir a menor interferência possível de agentes externos que possam alterar as medições. As blindagens utilizadas foram projetadas e fabricadas pelo setor de mecânica do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD).



**Figura 23:** Blindagem associada aos sistemas de detecção.

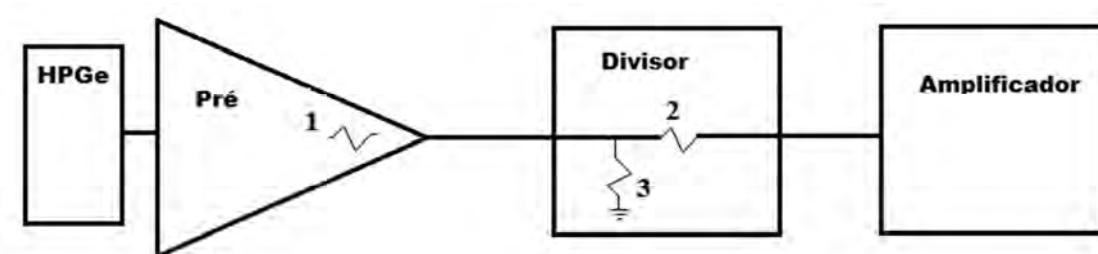
Os detectores semicondutores de HPGe fazem uso de pré-amplificadores sensíveis à carga conforme **Figura 24**.



**Figura 24:** Pré-amplificador sensível à carga.

Este detector é ajustado de fábrica para operar na faixa de 3 a 300 keV. Então, uma radiação que deposita 300 keV de energia fornece um sinal próximo a 1 V. Com o objetivo de ampliar a faixa de trabalho do detector atenuando o sinal de saída do pré-amplificador, utilizou-se um dispositivo inserido entre o pré-amplificador e o amplificador para dividir o sinal, como descrito por OLIVEIRA *et al.*, 2012 [69]. O

dispositivo, desenvolvido pelo laboratório, é mostrado na **Figura 25**. Escolhendo os valores adequados dos resistores 2 e 3, este dispositivo aumenta a faixa máxima de trabalho que permite observar todo o espectro do  $^{152}\text{Eu}$ .



**Figura 25:** Dispositivo Divisor de Tensão acoplado.

Os espectros foram analisados usando o software MAESTRO, determinando as áreas de cada região do multipletto, ou seja, as áreas de cada grupo de linhas espectrais relacionadas. As áreas dos picos de energia foram comparadas com as ajustadas pelo programa de deconvolução COLEGRAM (LÉPY, 2004) [71] desenvolvido pelo LNHB, apenas para melhorar a visão dos picos em questão, confirmando que não sofrem maiores interferências de outros picos. Especialmente no caso dos picos  $K_{\alpha 1}$  e  $K_{\alpha 2}$  que, com energias tão próximas (39,5 keV e 40,1 keV, respectivamente), aparecem como um único pico (39,9 keV), o uso do Código Colegram não foi estritamente necessário. Não era o caso de separar linhas de um espectro complexo, uma vez que as áreas adjacentes seriam somadas, a fim de se obter as taxas de contagem de interesse.

### 3.3 Equação do Método

A seguinte equação (38), obtida por BRINKMAN *et al.* (1977) [72], onde  $N_0$  é a atividade da fonte, foi aplicada aqui para a padronização do  $^{152}\text{Eu}$ . Esta equação fundamental também foi minuciosamente deduzida por CARLES e MALONDA, (2011) [73], resultando novas expressões (39), (40) e (41). Então,  $N_x$ ,  $N_{xy}$  e  $N_{xx}$  indicam os picos de absorção total dos raios X, os relativos às coincidências X- $\gamma$  e os picos das coincidências X-X, respectivamente, sendo  $N_x$  as contagens sob os picos  $K_{\alpha} + K_{\beta}$ .  $N_{xy}$  as contagens nos picos  $(K_{\alpha} + \gamma) + (K_{\beta} + \gamma)$ . Como os eventos de captura eletrônica e conversão interna são seguidos pela emissão de raios X,  $N_{xx}$  representa as contagens abaixo dos picos  $(2 K_{\alpha}) + (K_{\alpha} + K_{\beta}) + (2 K_{\beta})$ . T é a contagem sob o espectro total e  $N_{\gamma}$  as contagens sob o pico  $\gamma$ .

$$N_0 = T + \frac{N_\gamma N_x}{N_{xy}} - \frac{N_{xx} N_\gamma^2}{N_{xy}^2} \quad (38)$$

$$N_x = N_\alpha + N_\beta \quad (39)$$

$$N_{xx} = N_{\alpha\alpha} + N_{\alpha\beta} + N_{\beta\beta} \quad (40)$$

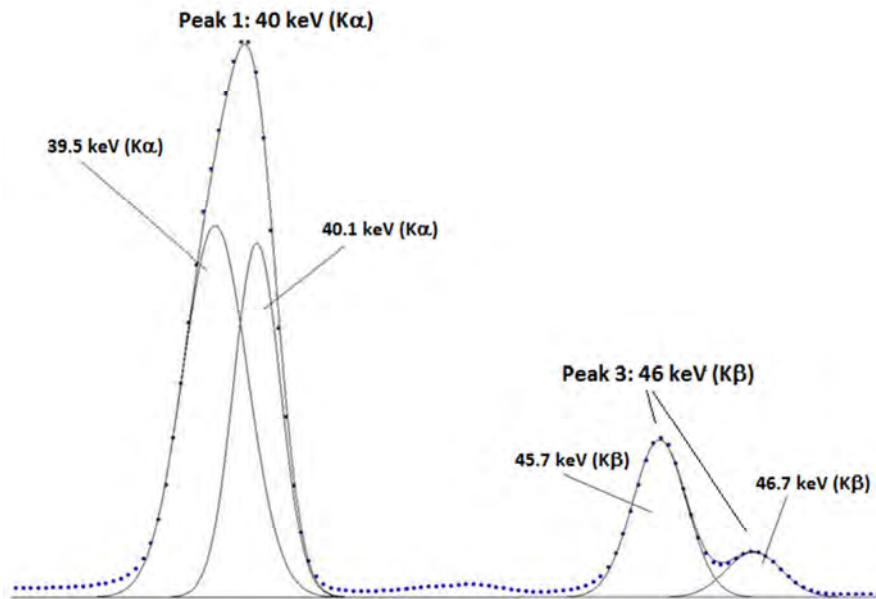
$$N_{xy} = N_{\alpha\gamma} + N_{\beta\gamma} \quad (41)$$

Pode-se observar que a Eq. (38), aplicada também para a padronização do  $^{133}\text{Ba}$  por DA SILVA (2017) [33] não possui parâmetros nucleares, nem eficiência de detecção, o que confirma o caráter absoluto do método pico-soma. Como nenhum parâmetro nuclear está envolvido na referida equação, a principal causa que afeta a incerteza de  $N_0$  é a determinação das áreas líquidas de picos do espectro.

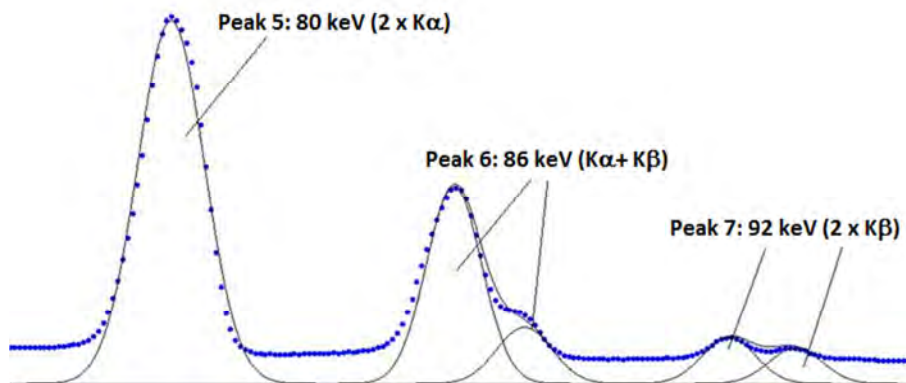


## 4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

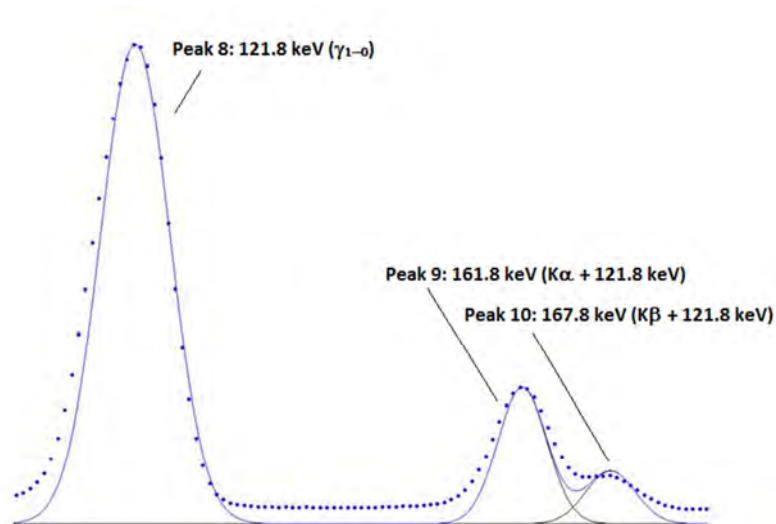
Para a padronização da solução foi utilizada a coincidência de  $K_{\alpha 1,2}$  e  $K_{\beta 1,2}$  com o gama de 121,8 keV ( $\gamma_{1,0}$ ). A área total do espectro também foi determinada. As **Figuras 26, 27 e 28** mostram os espectros obtidos pelo código Colegram com as áreas dos picos separadas basicamente para fins ilustrativos.



**Figura 26:** Espectro no COLEGRAM mostrando, a título de ilustração, os picos correspondentes aos raios X,  $K_{\alpha}$  e  $K_{\beta}$  (como um zoom dos picos 1 e 3 da Figura 17).



**Figura 27:** Espectro no COLEGRAM detalhando os picos-soma dos raios X,  $K_{\alpha}$  e  $K_{\beta}$  (como um zoom dos picos 5, 6 e 7 da Figura 17).



**Figura 28:** Espectro no COLEGRAM mostrando o pico dos raios  $\gamma$  de 121,8 keV e os picos-soma dos fótons X e  $\gamma$  (como um zoom dos picos 8, 9 e 10 Figura 18).

A atividade obtida pelo método pico-soma de contagens em coincidências foi dada pela média de atividades das seis fontes. A **Tabela 7** mostra os resultados. As incertezas associadas dependem principalmente da determinação das áreas dos picos, que podem ser examinadas da mesma forma que na análise de espectrometria tradicional.

Da eq. (38) podemos deduzir a equação fundamental (42) para propagar as incertezas relacionadas às taxas de contagem.

$$u_{N_0}^2 = \left[ T + \left( \frac{N_\gamma}{N_{x\gamma}} \right)^2 N_x + \left( \frac{N_x}{N_{x\gamma}} - \frac{2N_\gamma N_{xx}}{N_{x\gamma}^2} \right)^2 N_\gamma + \left( -\frac{N_\gamma^2}{N_{x\gamma}^2} \right)^2 N_{xx} + \left( 2 \frac{N_\gamma^2 N_{xx}}{N_{x\gamma}^3} - \frac{N_x N_\gamma}{N_{x\gamma}^2} \right)^2 N_{xy} \right] \quad (42)$$

Em geral, as principais fontes de incerteza na espectrometria gama convencional são: atividade da fonte, amostragem, alíquotas da fonte (massa), medição das áreas dos picos, variações das áreas de pico provocadas pelo background, variações por atenuação na amostra, geometria fonte-detector, correção do tempo morto (tempo vivo/tempo real), empilhamento de pulsos ou somas aleatórias, somas por coincidências, decaimento radioativo, probabilidade de emissão de fótons, eficiências para os picos de absorção total, e deconvolução de multipletos.

A incerteza relativa padrão combinada associada a qualquer resultado obtido por espectrometria gama depende não apenas das incertezas dos principais parâmetros de entrada, mas também de diferentes fatores de correção (LÉPY *et al.*, 2015) [74]. As fontes de incertezas na determinação da atividade podem ser divididas em dois grupos.

Como a precisão da atividade do  $^{152}\text{Eu}$ , obtida pelo método pico-soma, é independente de transferências de eficiência e das correções para somas por coincidência, as fontes de incerteza do primeiro grupo são devidas às taxas de contagem dos picos e à contagem bruta do espectro. Portanto, essas incertezas são determinadas principalmente pela qualidade do espectrômetro utilizado. As fontes de incerteza do segundo grupo são oriundas das incertezas relacionadas aos dados nucleares e atômicos retirados da literatura. A **Tabela 8** mostra os componentes das incertezas com alguns valores obtidos de testes preliminares.

A avaliação das incertezas foi feita de acordo com as recomendações da norma ISO GUM [10]. Foi possível propagar as incertezas para o método pico-soma utilizando a distribuição de Poisson, e com isso conseguiu-se obter melhorias no valor das incertezas medidas pelo método de propagação mais antigo (OLIVEIRA, 2012) [69].

A área do pico obtida pelo MAESTRO (área líquida apenas com a subtração do fundo) foi comparada com a obtida após o ajuste dos picos pelo COLEGRAM para verificar a influência da incerteza nos ajustes de picos (*peak fitting uncertainty*), nos componentes da estatística de contagem (as estatísticas de contagem geradas na determinação da área do pico). Segundo Delgado *et al.*, 2002 [75], a incerteza de cada área de pico é determinada em função da incerteza total da área, combinada quadraticamente com o desvio padrão de cada uma das áreas obtidas separadamente.

As perdas devidas às somas aleatórias, isto é, empilhamento de pulsos, são efeitos dependentes da taxa de contagem. Combinando-se com as perdas por tempo morto, o fenômeno é chamado de “efeito de tempo morto e empilhamento de pulsos” e geralmente tratado simultaneamente. Mas o efeito tem pouca importância nas baixas taxas de contagem. Para manter o *pile-up* reduzido, foi escolhida uma atividade menor que 500 kBq. E o tempo morto, obtido pelo sistema de aquisição (ADC MAESTRO) a partir do tempo vivo e do tempo real, foi mantido em torno de 5%. Verifica-se que até cerca de 10% de tempo morto, não há distorção na taxa de contagem (usando um pico de referência e, em seguida, aumentando a taxa de contagem com outra fonte com atividade maior).

A **Tabela 9** ilustra os resultados obtidos pelo método de contagem pico-soma comparados àqueles obtidos por contagens de anticoincidência e por câmara de ionização rastreável ao BIPM. Os resultados estão de acordo dentro da incerteza padrão.

**Tabela 7:** Resultados de atividades obtidas pelo método pico-soma para o  $^{152}\text{Eu}$ .

<b>Fonte</b>	<b>Atividade (kBq/g)</b>
32S16	155,306
33S16	153,475
34S16	154,009
35S16	154,871
36S16	153,681
37S16	154,168
<b>Média</b>	<b>154,252</b>
<b>Desvio padrão (%)</b>	<b>0,46</b>

**Tabela 8:** Componentes de incerteza do  $^{152}\text{Eu}$  no método de coincidência pico-soma

<b>Componentes</b>	<b>Tipo</b>	<b>Incerteza padrão relativa(%)</b>
Tempo vivo	B	0,05
Empilhamento	A	0,07
Parâmetros de decaimento	B	0,12
Massa	B	0,10
Fator de diluição	B	0,05
Background	B	0,01
Estatística de contagem	A	0,46
<b>Combinada (<math>k = 1</math>)</b>		<b>0,496</b>
<b>Expandida (<math>k = 2</math>)</b>		<b>0,99</b>

**Tabela 9:** Comparação das atividades do  $^{152}\text{Eu}$  obtidas por três métodos no LNMRI ( $k = 2$ ).

<b>Método</b>	<b>Atividade (kBq/g)</b>	<b><math>u_A</math> (%)</b>	<b><math>u_B</math> (%)</b>	<b>U (%)</b>
Pico-soma	154,252	0,93	0,34	0,99
Câmara de Ionização	154,217	0,13	0,83	0,84
Anticoincidência	154,415	0,86	0,08	0,86

## 5. CONCLUSÕES

O LNMRI / BRASIL vem realizando, nos últimos anos, padronizações absolutas utilizando a contagem de coincidências pico-soma para vários radionuclídeos de decaimento simples, tirando proveito da rapidez na execução das medições e demonstrando eficácia através de vários trabalhos publicados.

Neste trabalho, padronizou-se pioneiramente uma solução de  $^{152}\text{Eu}$ , um nuclídeo de decaimento complexo, pelo método de coincidência pico-soma utilizando o pico de 121,8 keV e os correspondentes raios X característicos do ramo do  $^{152}\text{Sm}$ . A escolha destes picos foi realizada previamente, a partir da utilização de uma abordagem analítica que, partindo de uma técnica matricial, permitiu a dedução de expressões teóricas prevendo as taxas de contagem de picos do espectro energético de fótons, conhecidas como equações de taxa de contagem, que descrevem as somas por coincidência de raios gama e X.

Os resultados das atividades obtidas por coincidência pico-soma, por contagem de anticoincidência e por câmara de ionização rastreável ao BIPM, apresentaram concordância dentro da incerteza padrão, mostrando que este método absoluto pode ser usado para padronizar nuclídeos de decaimento complexo como o  $^{152}\text{Eu}$ , no qual a cascata de desexcitação do núcleo ocorre simultaneamente com a cascata de desexcitação da camada atômica.

O resultado obtido pelo método pico-soma, apresentando valores de incerteza de 0,50% ( $k = 1$ ), foi comparado com a calibração realizada pela câmara de ionização rastreável ao BIPM. A diferença foi de 0,02%, dentro da incerteza padrão.

Os resultados desta pesquisa foram publicados em uma das revistas científicas internacionalmente mais relevantes na área, *Applied Radiation and Isotopes*, tendo sido apresentados e discutidos durante a 21<sup>a</sup> Conferência do Comitê Internacional de Metrologia de Radionuclídeos - *The International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM)* - realizada em Buenos Aires em 2017. Além desta publicação outras três abordaram aspectos dos assuntos aqui tratados (FERREIRA FILHO *et al.*, 2018a, b, c, d) [14] [60] [67] [76]. Uma proposta de trabalho futuro poderia envolver o estudo das probabilidades de emissão gama ( $P_\gamma$ ) no esquema de decaimento do  $^{152}\text{Eu}$ .

## APÊNDICE

### AS PROBABILIDADES DE DETECÇÃO

Ademais da desconhecida atividade da fonte, as equações de taxa de contagem contém as probabilidades de detecção (ou não detecção) dos fótons de dadas energias, probabilidades que são definidas mediante parâmetros atômicos e nucleares conhecidos (Tabelas 1-3) e pelas eficiências, total e de pico, que, como a atividade, também são incógnitas nessas equações.

#### A.1. Captura de elétrons

O  $^{152}\text{Eu}$  se desintegra também por captura de elétrons e transita ao  $i$ -ésimo nível do  $^{152}\text{Sm}$ . As probabilidades de detectar fótons  $K_\alpha$  e  $K_\beta$  emitidos nas capturas de elétrons da camada K do átomo pai nas transições ao nível  $i$  do núcleo filho excitado são, respectivamente, (B.1) e (B.2):

$$a_{n-j}(E_{K\alpha}) = y_{n-j} \varepsilon(E_{K\alpha}) P_{Kj} \omega_K g_1 \quad (\text{B.1}) \quad b_{n-j}(E_{K\beta}) = y_{n-j} \varepsilon(E_{K\beta}) P_{Kj} \omega_K g_2 \quad (\text{B.2})$$

onde:

- $P_{Kj}$  é a probabilidade de capturar os elétrons da camada K com transição ao nível  $j$ ,
- $\omega_K$  é o rendimento fluorescente para a camada K,
- $\varepsilon(E)$  é a máxima eficiência de energia  $E$ ,
- $y_{n-j}$  é a probabilidade de captura de elétrons, e
- $g_1$  e  $g_2$  são, respectivamente, as frações de  $K_\alpha$  e  $K_\beta$  ( $g_1 + g_2 = 1$ ),

A probabilidade de não detecção é (B.3):

$$q_{n-j} = y_{n-j} [1 - \varepsilon_t(E_{K\alpha}) P_{Kj} \omega_K g_1 - \varepsilon_t(E_{K\beta}) P_{Kj} \omega_K g_2], \quad (\text{B.3})$$

onde  $\varepsilon_t(E)$  é a eficiência total para a energia  $E$ .

## A.2. Conversão interna

As probabilidades de detectar fótons  $K_\alpha$  e  $K_\beta$  criados na conversão interna na transição  $i \rightarrow j$  são, respectivamente, (B.4) e (B.5):

$$a_{i-j} = y_{i-j} \varepsilon(E_{K\alpha}) \alpha_{K\alpha} / (1 + \alpha_{i-j}) \omega_K g_1 \quad (\text{B.4}) \quad b_{i-j} = y_{i-j} \varepsilon(E_{K\beta}) \alpha_{K\beta} / (1 + \alpha_{i-j}) \omega_K g_2 \quad (\text{B.5})$$

onde

- $\alpha_{K\alpha}$  e  $\alpha_{i-j}$  são os coeficientes de conversão interna da camada K e total, respectivamente,
- $y_{i-j}$  é a probabilidade normalizada para a transição  $i \rightarrow j$ .

A probabilidade de detectar fótons gama emitidos na transição  $i \rightarrow j$  é (B.6):

$$\gamma_{i-j} = y_{i-j} \varepsilon(E_{i-j}) / (1 + \alpha_{i-j}) \quad (\text{B.6})$$

E a probabilidade de não detecção na mesma transição  $i \rightarrow j$  é (B.7)

$$q_{i-j} = y_{i-j} [1 - \varepsilon(E_{K\alpha}) \alpha_{K\alpha} / (1 + \alpha_{i-j}) \omega_K g_1 - \varepsilon(E_{K\beta}) \alpha_{K\beta} / (1 + \alpha_{i-j}) \omega_K g_2 - \varepsilon(E_{i-j}) / (1 + \alpha_{i-j})] \quad (\text{B.7})$$

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] MANN, W. B., RYTZ, A., SPERNOL, A. 1991, **Radioactivity measurements principle and practice**. 1 ed., Oxford: Pergamon Press.
- [2] MCCALLUM, G. J., COOTE, G. E. 1975, “Influence of source-detector distance on relative intensity and angular correlation measurements with Ge(Li) spectrometers”. **Nuclear Instruments and Methods**, Elsevier, V 130-1, P 189-197. doi.org/10.1016/0029-554X(75)90173-1
- [3] L'ANNUZIATA, M. F. 2012. **Handbook of Radioactivity Analysis**. 3rd Ed. San Diego CA: Academic Press.
- [4] GILMORE, G.; HEMINGWAY, J. D. 1995. **Practical Gamma-Ray Spectrometry**. New York: John Wiley & Sons. ISBN 0-471-95150-1
- [5] NCRP, Report No. 58, 1985. **A handbook of radioactivity measurements procedures**. 2nd Edition, Recommendations of the National Council on Radiation Protection and Measurements, Bethesda, pp. 74–93.
- [6] POMMÉ, S., 2007. “Methods for primary standardization of activity”. **Metrologia** 44, S17–S26. doi:10.1088/0026-1394/44/4/S03
- [7] KIM, I. J., PARK, C. S., CHOI, H. D. 2003. “Absolute calibration of  $^{60}\text{Co}$  by using sum-peak method and an HPGe detector”. **Applied Radiation and Isotopes** 58, 227–233. doi:10.1016/S0969-8043(02)00295-6
- [8] DE OLIVEIRA, E. M., IWAHARA, A., POLEDNA, R. *et al.*, 2012. “Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of  $^{22}\text{Na}$ ”, **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, v. A 687, pp. 69-74.
- [9] INMETRO. 2012. **Vocabulário Internacional de Metrologia (VIM): conceitos fundamentais e gerais dos termos associados**. Duque de Caxias: Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO) 1ª ed. brasileira.
- [10] GUM. 2012. **Guia para Expressão de Incerteza de Medição – Avaliação de Dados de Medição**, 1ª Edição Brasileira da 1ª Edição do BIPM de 2008, Duque de Caxias: JCGM (Joint Committee for Guides in Metrology)/INMETRO.
- [11] VANIN, V. R., DE CASTRO, R. M., BROWNE, E. 2004.  $^{152}\text{Eu}^{89}$ . Table de Radionucléides, USP, CEA/LNE-LNHB, DDEP recommended data. Decay Data Evaluation Project, Internet: [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Eu-152\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Eu-152_tables.pdf)
- [12] JORDANOV, D., NAÐÐERÐ, L., PUZOVIĆ, J., ROSIĆ, M., KOKUNOŠESKI, M., 2016. “The application of the new matrix method for calculating coincidence summing effects in the case of radionuclide with the more complex decay scheme -  $^{152}\text{Eu}$ ”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. v. A 836, 22–29. doi:10.1016/j.nima.2016.08.008
- [13] NOVKOVIĆ, D., KANDIĆ, A., DURAŠEVIĆ, M., VUKANAC, I., MILOŠEVIĆ, Z., NADDERD, L. 2007a. “Coincidence summing of X- and  $\gamma$ -rays in  $\gamma$ -ray spectrometry”, **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, v. A 578, 207–217. doi:10.1016/j.nima.2007.05.199.



- [14] FERREIRA FILHO, A. L., DA SILVA, R., DA CRUZ, P. A. L., DA SILVA, C. J., POLEDNA, R., ARAÚJO, M. T. F., ARCANJO, C. F., DELGADO, J. U., LOPES, R. T., 2018a. “Application of the Sum-Peak Method to Activity Standardizations of  $^{152}\text{Eu}$  Sources in LNMRI (BR)”. **Applied Radiation and Isotopes** 134 (April). Elsevier Ltd: 340–50. doi:10.1016/j.apradiso.2017.09.041.
- [15] KNOLL, G. F., 1989, **Radiation Detection and Measurement**, 2nd ed. Hoboken, John Wiley & Sons.
- [16] DEBERTIN, K. AND HELMER, R., G., 1988. **Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors**. Amsterdam: North Holland, 399 pp.
- [17] DEBERTIN, K., SCHÖTZIG, U. 1979. “Coincidence Summing Corrections in Ge(Li)-Spectrometry at Low Source-to-Detector Distances”. **Nuclear Instruments and Methods**. 158, 471.
- [18] MOREL J., CHAUVENET B., KADACHI A, 1983. “Coincidence - summing corrections in gamma ray spectrometry for normalized geometries” **Int. J. Applied Radiation and Isotopes**. 34 (8), 1115.
- [19] RIZZO, S., TOMARCHIO, E., 2010. “Numerical expressions for the computation of coincidence-summing correction factors in  $\gamma$ -ray spectrometry with HPGe detectors”. **Applied Radiation and Isotopes**. 68 (4–5), 555–560.
- [20] AGARWAL, C., CHAUDHURY, S., GOSWAMI, A., GATHIBANDHE, M., 2011. “True coincidence summing corrections in point and extended sources”. **J. Radioanal. Nucl. Chem**. 289 (3), 773–780.
- [21] DELGADO, J. U., DE ALMEIDA, M. C. M., POLEDNA, R., 2006. “Precise determination of Ge detector efficiency curve for obtaining activities in radionuclides gamma-emitters”. In: Proceedings of the 18<sup>th</sup> IMEKO World Congress 2006: Metrology for a Sustainable Development, vol.1, pp. 231–233.
- [22] ARNOLD, D., SIMA, O., 2004. “Application of GESPECOR software for the calculation of coincidence summing effects in special cases”. **Applied Radiation and Isotopes**. 60, 167–172.
- [23] LÉPY, M-C., *et al.*, 2010. “Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry”. **Applied Radiation and Isotopes**. 68 (7–8), 1407–1412.
- [24] NOVKOVIĆ, D., ĐURAŠEVIĆ, M., KANDIĆ, A., VUKANAC, I., MILOŠEVIĆ, Z., NAĐDERĐ, L., 2007b. “Coincidence summing of X- and  $\gamma$ -rays of  $^{133}\text{Ba}$ ”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. v. A 582, 592–602.
- [25] NOVKOVIĆ, D., VUKANAC, I., KANDIĆ, A., ĐURAŠEVIĆ, M., MILOŠEVIĆ, Z., 2012a. “Coincidence summing of X- and gamma rays of  $^{75}\text{Se}$ ”. **Applied Radiation and Isotopes**. 70 (3), 520–527.
- [26] NOVKOVIĆ, D., KANDIĆ, A., VUKANAC, I., ĐURAŠEVIĆ, M., MILOŠEVIĆ, Z., 2012b. “The direct measurement of  $^{57}\text{Co}$  activity by the sum-peak method”. **Applied Radiation and Isotopes**. 70 (9), 2154–2156.
- [27] KANISCH, G., VIDMAR, T., SIMA, O., 2009. “Testing the equivalence of several algorithms for calculation of the coincidence summing corrections”. **Applied Radiation and Isotopes**. 67 (10), 1952–1956.

- [28] MARINGER, F. 2010. **State-of-the-art activity measurement and radionuclide metrology in radiation protection**. Presentation. DOI: 10.13140/RG.2.2.16330.98240.
- [29] DA SILVA, C. J., 2008. **Implementação de um Sistema de Anti-Coincidência  $4\pi$ Cl-NaI(Tl) com Cronometragem em Tempo Vivo e Tempo Morto Extensível**, Tese de Doutorado, COPPE UFRJ, Rio de Janeiro.
- [30] DE OLIVEIRA, E. M., 2012. **Padronização Absoluta de Radionuclídeos Emissores de Pósitrons por Espectrometria Gama com o Método Pico-Soma**. Tese de Doutorado, UFRJ/COPPE, Rio de Janeiro.
- [31] LOUREIRO, J. S., 2013. **Sistema de Calibração de Radionuclídeos englobando os métodos de Coincidência, Anti-Coincidência e CIEMAT-NIST**. Tese de Doutorado, UFRJ/COPPE, Rio de Janeiro.
- [32] CORREIA, A. R., 2016. **Padronização de radionuclídeos por métodos absolutos de contagem em coincidência/anticoincidência e determinação de probabilidades de emissão de raios X característicos e gamas**. Tese de Doutorado, UFRJ/COPPE, Rio de Janeiro
- [33] DA SILVA, R. L., 2017. **Padronização Primária de Radionuclídeos com decaimento complexo usando o Método de Coincidência Pico-Soma e Espectrometria de Fótons com detector HPGE**, Tese de Doutorado, IRD, Rio de Janeiro.
- [34] DE ARAÚJO, M. T. F., 2018. **Uma Abordagem Teórico-Experimental do Método Pico-Soma e suas Aplicações**, Tese de Doutorado, UFRJ/COPPE, Rio de Janeiro.
- [35] BOBIN, C., 2007. “Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation”. **Metrologia**, 44, 4. Disponível em <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/0026-1394/44/4/S04/meta>.
- [36] CAMPION, P. J., 1964. “The Standardization of Radioisotopes by the Beta-Gama Coincidence and Method using Efficiency Detectors”, **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**. 4, 232.
- [37] HUTCHINSON, J. M. R., MANN, W. B., MULLEN, P. A., 1973. “Sumpeak counting with two crystals”. **Nuclear Instruments and Methods**. 112, 187–196.
- [38] ELDRIGE, J. S., CROWTHER, P., 1964. “Absolute determination of  $^{125}\text{I}$  in clinical applications”, **Nucleonics** 22 56–9.
- [39] BRINKMAN, G. A., ATEN Jr., A. H. W., VEENBOER, J. Th., 1963a. “Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-I”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**. 14, 153–157.
- [40] BRINKMAN, G. A., ATEN Jr., A. H. W., VEENBOER, J. Th., 1963b. “Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-II”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**. 14, 433–437.
- [41] BRINKMAN, G. A., ATEN Jr., A. H. W., 1965. “Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-V”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**. 16, 177–181.,
- [42] BRINKMAN, G. A., ATEN Jr., A. H. W., 1963. “Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-III”. **International Journal of Applied Radiation and**

**Isotopes.** 14, 503–510.

- [43] BRINKMAN, G.A., ATEN Jr., A. H. W., VEENBOER, J. Th., 1965. “Absolute standardization with a NaI(Tl) crystal-IV”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes.** 16, 15–18.
- [44] SIEGBAHN K., 1965. **Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectrometry**, vol. 1 e 2, Amsterdam, North Holland Publishing Co.
- [45] KORUN M., MARTINČIČ, R., 1993. “Coincidence summing in gamma and X-ray spectrometry”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.** A325, 478-484.
- [46] MARTIN, R. H. AND TAYLOR, J. G. V. 1992. “The standardization of  $^{125}\text{I}$ : a comparison of three methods”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.** A 312 64-66 North-Holland.
- [47] ZAJIC, V. 1986. “Instrumental corrections of peak areas in gamma-ray sum-peak counting”. **Applied Radiation and Isotopes.** v. 37 - 12, 1225-1233. doi: 10.1016/0883-2889(86)90011-0
- [48] DE ARAÚJO, M. T. F., POLEDNA, R., DELGADO, J. U. *et al.*, 2016. “Absolute Standardization of the impurity  $^{121}\text{Te}$  associated to the production of the radiopharmaceutical  $^{123}\text{I}$ ”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**, v. 109, pp. 389-392.
- [49] OGATA Y., MIYAHARA H., ISHIHARA M., *et al.*, 2016, “Development of the modified sum-peak method and its application”. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes.** v. 109, pp. 354-357.
- [50] CAPOGNI, M., CECCATELLI, A., DE FELICE, P., FAZIO, A., 2006. “Random-summing correction and pile-up rejection in the sum-peak method”. **Applied Radiation and Isotopes.** v. 64, pp. 1229-1233.
- [51] WANG, Z., ZHANG, X., CHANG, Y., 2001. “The determination of  $^{125}\text{I}$  activity using sum-peak method with a well-type HPGe-detector-based spectrometer”, **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.** v. A 459, pp. 475-481.
- [52] VIDMAR T., KOSSERT, K., NÄHLE, O. J., OTT. O., 2009. “Application of the sum-peak method to activity standardizations of extended  $^{60}\text{Co}$  sources”, **Applied Radiation and Isotopes.** v. 67, pp. 160-163.
- [53] BIKIT, I. NEMES, T. MRDA, D., 2009. “Absolute activity measurement of  $^{152}\text{Eu}$  sources with a single detector”. **Nucl. Instr. and Meth.** A612, 103.
- [54] IWAHARA, A., POLEDNA, R., DA SILVA C. J., TUHATA, L. 2009. “Primary activity standardization of  $^{57}\text{Co}$  by sum-peak method”. **Applied Radiation and Isotopes.** 67, 10, 1887.
- [55] DE ALMEIDA, M. C. M., IWAHARA, A., POLEDNA, R., DA SILVA, C. J., DELGADO, J. U., 2007. “Absolute disintegration rate and 320 keV  $\gamma$ -ray emission probability of  $^{51}\text{Cr}$ ”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.** v. A580, pp. 165-168.
- [56] DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., 1995, “Accidental Summing Corrections in  $^{125}\text{I}$  Activity Determination by the Sum-peak Method”, **Applied Radiation and Isotopes**, v. 46, pp. 945-948.

- [57] DA SILVA, M. A. L., POLEDNA, R.; IWAHARA, A., DA SILVA, C. J., DELGADO, J. U., LOPES, R. T., 2006. “Standardization and decay data determinations of  $^{125}\text{I}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{203}\text{Hg}$ ”, **Applied Radiation and Isotopes**, v. 64, pp. 1440-1445.
- [58] SEMKOW, T. M., MEHMOOD, G., PAREKH, P. P., VIRGIL, M., 1990. “Coincidence summing in gamma-ray spectroscopy”. **Nuclear Instruments and Methods**. A290, p. 437
- [59] JUTIER, C., GROSS, P., LE PETIT G., 2007. “A new synthetic formalism for true coincidence summing calculations”. **Nuclear Instruments and Methods**. A 580, p. 1344-1354
- [60] FERREIRA FILHO, A. L., GOMES, R. S., DA SILVA, R. L., DA CRUZ, P. A. L., DELGADO, J. U., LOPES, R. T., 2018b. “Derivación de las ecuaciones de tasa de conteo de pico describiendo las coincidências-suma de gamma y rayos X”. **XI Regional Congress IRPA**, 8180, La Habana, Cuba, 16-20 abril de 2018.
- [61] ARNOLD, D.; SIMA, O., 2006. “Calculation of coincidence summing corrections for x-ray peaks and for sum peaks with x-ray contributions”. **Applied Radiation and Isotopes**, 64 1297–302
- [62] NOVKOVIĆ, D., NADJDJERDJ, L., ĐURAŠEVIĆ, M., VUKANAC, I., KANDIĆ, A., MILOŠEVIĆ, Z., 2009. “The direct measurement of  $^{133}\text{Ba}$  activity by the sum-peak method”. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. v. A608, 116–120.
- [63] RATEL, G., MICHOTTE, C., 2003. “BIPM Comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57 of Activity Measurements of the Radionuclide  $^{57}\text{Co}$ , Final Report-Co-57”. [https://www.bipm.org/utis/common/pdf/final\\_reports/RI/BIPM.RI\(II\)/BIPM.RI\(II\)-K1.Co-57.pdf](https://www.bipm.org/utis/common/pdf/final_reports/RI/BIPM.RI(II)/BIPM.RI(II)-K1.Co-57.pdf).
- [64] RATEL, G., MICHOTTE, C., HINO, Y., KOSSERT, K., JANßEN, H., 2005. “Activity Measurements of the Radionuclide  $^{57}\text{Co}$  for the NMIJ, Japan and the PTB, Germany in the Ongoing Comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57”, Update Final Report Co-57. [https://kcdb.bipm.org/appendixb/appbresults/bipm.ri\(ii\)-k1.co-57/bipm.ri\(ii\)-k1.co-57\\_final\\_report%20\(2\).pdf](https://kcdb.bipm.org/appendixb/appbresults/bipm.ri(ii)-k1.co-57/bipm.ri(ii)-k1.co-57_final_report%20(2).pdf)
- [65] MICHOTTE, C., RATEL, G., COURTE, S., HINO, Y., YUNOKI, A., BOBIN, C., MOUNE, M., 2009. “Activity Measurements of the Radionuclide  $^{57}\text{Co}$  for the NMIJ, Japan and the LNE-LNHB, France in the Ongoing Comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57”, Final Update Report Co-57. [https://kcdb.bipm.org/appendixb/appbresults/bipm.ri\(ii\)-k1.co-57/bipm.ri\(ii\)-k1.co-57\\_final\\_report%20\(3\).pdf](https://kcdb.bipm.org/appendixb/appbresults/bipm.ri(ii)-k1.co-57/bipm.ri(ii)-k1.co-57_final_report%20(3).pdf)
- [66] NAÐÐERÐ, L. J.; DRAGANA, J. J.; MILOS, D. D., 2012, “A new matrix method for calculating coincidence summing effects for gamma spectroscopy”, **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, A 662, pp. 21-25
- [67] FERREIRA FILHO, A. L., DA CRUZ, P. A. L., DELGADO, J. U., LOPES, R. T., 2018c. “Exposing all the decay paths of  $^{152}\text{Eu}$  and their probabilities”. **Journal of Physics: Conference Series**, Volume 1044, 012032. Proceedings of 2017 Joint IMEKO TC1-TC7-TC13 Symposium: Measurement Science Challenges in Natural and Social Sciences, doi: 10.1088/1742-6596/1044/1/012032

- [68] NOVKOVIĆ, D., ĐURAŠEVIĆ M., KANDIĆ A., VUKANAC I., ŠEŠLAK B., MILOŠEVIĆ Z., 2016. “Coincidence Summing Corrections for Point and Volume  $^{152}\text{Eu}$  Sources”. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 107, p. 138–144, 2016a.
- [69] OLIVEIRA, E. M., IWAHARA, A., POLEDNA, R., DELGADO, J. U., DA SILVA, C. J., DA SILVA, R. L., LOPES, R. T., 2012. “Standardization of  $^{65}\text{Zn}$  by sum-peak method”. **Applied Radiation and Isotopes**. 70, 2087–2090, doi: 10.1016/j.apradiso.2012.02.065.
- [70] LOURENÇO, V., BOBIN, C., 2015. “Weighing uncertainties in quantitative source preparation for radionuclide metrology”. **Metrologia** 52, S18–S29. doi:10.1088/0026-1394/52/3/S18.
- [71] LÉPY, M.-C., 2004. “Presentation of the Colegram Software”, Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB). Disponível em: [http://www.nucleide.org/Gamma\\_spectro/NT\\_04-26\\_Colegram.pdf](http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/NT_04-26_Colegram.pdf). Acesso em 09/08/2018.
- [72] BRINKMAN, G. A., LINDNER, L., VEENBOER, J. TH., (1977). “Sum peak calibration of I-123”, **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**. 28, 271-275.
- [73] CARLES, A. G., MALONDA, A. G., 2011. “Standardization of I-125. Sum-Peak Coincidence Counting”. **Informes Técnicos Ciemat**, 1245.
- [74] LÉPY, M.C., PEARCE, A., SIMA, O., 2015. “Uncertainties in gamma-ray spectrometry”. **Metrologia** 52, S123–S145. <http://dx.doi.org/10.1088/0026-1394/52/3/S123>.
- [75] DELGADO, J.U., MOREL, J., ETCHEVERRY, M., 2002. “Measurements of photon emission probabilities from the decay of  $^{226}\text{Ra}$  and daughters”. **Applied Radiation and Isotopes**. 56, 137–143. doi:10.1016/S0969-8043(01)00179-8.
- [76] FERREIRA FILHO, A. L., DA CRUZ, P. A. L., DA SILVA, R. L., GOMES, R. S., DELGADO, J. U., LOPES, R. T., 2018d. “Possibilidades para Padronização do  $^{152}\text{Eu}$  por cintilação líquida e por espectrometria gama”. **Brazilian Journal of Radiation Sciences**, Vol 6, n° 3, Proceedings of International Joint Conference Radio 2017, 24 - 29 September 2017, DOI: 10.15392/bjrs.v6i3.