



## UMA ABORDAGEM TEÓRICO-EXPERIMENTAL DO MÉTODO PICO-SOMA E SUAS APLICAÇÕES

Miriam Tainá Ferreira de Araújo

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 a obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes  
José Ubiratan Delgado

Rio de Janeiro  
Outubro de 2018

UMA ABORDAGEM TEÓRICO-EXPERIMENTAL DO MÉTODO PICO-SOMA E  
SUAS APLICAÇÕES

Miriam Tainá Ferreira de Araújo

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. Akira Iwahara, D.Sc.

---

Prof. Luiz Tauhata, D.Sc.

---

Prof. Davi Ferreira de Oliveira, D.Sc.

---

Prof. Carlos José da Silva, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL  
OUTUBRO DE 2018

Araújo, Miriam Tainá Ferreira de

Uma abordagem teórico-experimental do método pico-soma e suas aplicações/ Miriam Tainá Ferreira de Araújo. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2018.

XIV, 105 p.: il.; 29,7cm

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

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

Referências Bibliográficas: p. 77-82.

1. Método Pico-Soma.
2. Padronização absoluta do  $^{22}\text{Na}$ .
3. Padronização Absoluta do  $^{65}\text{Zn}$ .
4. Padronização Absoluta do  $^{60}\text{Co}$ .
5. Padronização Absoluta do  $^{121}\text{Te}$ . I. Lopes, Ricardo Tadeu II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

*A Deus.*  
*Ao Mestre Jesus.*  
*Ao companheiro Julio Cesar.*  
*A toda espiritualidade que me ajudou chegar até aqui.*

## AGRADECIMENTOS

A Deus por toda a benevolência e permissão para que este sonho se concretizasse.

Ao Mestre Jesus pelos ensinamentos de fé e de humanidade.

A espiritualidade superior pelos incontáveis auxílios nos momentos mais difíceis da minha caminhada.

Aos meus pais pela vida.

Ao companheiro Julio Cesar pela indescritível oportunidade de viver o amor verdadeiro em cada detalhe. Amor e alegria são ingredientes indispensáveis ao êxito de qualquer atividade no bem.

Ao Prof. Ricardo Tadeu Lopes pela orientação atenciosa, pelos conselhos ao longo desta caminhada e sobretudo pela confiança em mim depositada desde o primeiro dia de curso.

Ao Prof. José Ubiratan Delgado pela orientação continuada desde à época do mestrado em 2013 até os dias de hoje. Muito obrigada pela confiança, pelo apoio e pela disponibilidade em doar os conhecimentos para que eu pudesse estar aqui hoje.

Ao Prof. e pai Roberto Poledna por tudo aquilo que fizeste desde os primórdios de nossa amizade. Pelos presentes que vão muito além do conhecimento e talentos que são sabidos pelos colegas do IRD, CBPF e tantos outros, o senhor transmitiu valores, conselhos amigos e paternos nos momentos de angústia. Quem tem um amigo, mesmo que um só, não importa onde se encontre, jamais sofrerá de solidão; poderá morrer de saudades, mas não estará só.

Aos amigos que nunca faltaram quando mais precisei e que fazem parte do tesouro que guardo em meu coração, meus sinceros agradecimentos, pois sem vocês a jornada teria sido muito mais difícil e a vitória não teria o mesmo sabor: Julio Cesar, Roberto Poledna, Mirian Gonçalves, Eduardo Bonfim, Alan Ramires, Diana Santos, Paulo Travassos, Eduarda Rezende, Jorgea Elaine, Jorge Guerra, Carmen Berrientos, Bruno Mendes, Edson, entre tantos e tantos outros.

Aos colegas de trabalho do IRD pelo apoio e auxílio para que a tese se concretizasse, em especial: Ronaldo Lins, Luiz Tauhata, Antônio Eduardo, Jhonny, Eduardo, Estela, Carlos José, Akira Iwahara, Paulo Alberto e Alfredo.

Aos colegas de trabalho do IFRJ pelo estímulo e incentivo para que esta tese fosse concluída.

A coordenação de apoio à pesquisa CAPES pelo apoio financeiro.

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

## UMA ABORDAGEM TEÓRICO-EXPERIMENTAL DO MÉTODO PICO-SOMA E SUAS APLICAÇÕES

Miriam Tainá Ferreira de Araújo

Outubro/2018

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes  
José Ubiratan Delgado

Programa: Engenharia Nuclear

O método pico-soma tem seu uso destinado à padronização absoluta de radioisótopos emissores de radiação eletromagnética sob regime de coincidência. Desde a época da concepção do método feita em 1963 por Brinkman e colaboradores, a evolução dos aparatos experimentais permitiu melhorias na acurácia da medição de parâmetros de relevância que são utilizados para a obtenção da grandeza atividade por exemplo. Algumas inconsistências teóricas e conceituais foram observadas na proposta original do método, que serão cuidadosamente discutidas e reapresentadas neste trabalho. Portanto, o cerne desta pesquisa consistirá da apresentação de uma abordagem teórica e experimental para o método pico-soma a fim de que as considerações a ele atribuídas reafirmem-no para aplicação em padronizações absolutas, e que com isso o mesmo se torne mais aceito por parte da comunidade científica metrológica.

Como consequência destas correções, um estudo detalhado das incertezas associadas ao método, análise crítica da instrumentação utilizada e a apresentação de medições de parâmetros obtidos para vários radionuclídeos foi feita visando à completude do estudo apresentado neste manuscrito.

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

A THEORETICAL-EXPERIMENTAL APPROACH OF THE SUM-PEAK METHOD  
AND ITS APPLICATIONS

Miriam Tainá Ferreira de Araújo

October/2018

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

José Ubiratan Delgado

Department: Nuclear Engineering

The sum-peak method has its use for the absolute standardization of radioisotopes emitting electromagnetic radiation under a coincidence regime. From the time of the conception of the method made in 1963 by Brinkman et al., the evolution of the experimental apparatus allowed improvements in the accuracy of the measurement of relevance parameters that are used to obtain the activity greatness for example. Some theoretical and conceptual inconsistencies were observed in the original proposal of the method, which will be carefully discussed and re-presented in this work. Therefore, the core of this research will consist of the presentation of a theoretical and experimental approach to the sum-peak method in order that the considerations attributed to it reaffirm it for application in absolute standardizations, and with that the same becomes more accepted by part of the metrological scientific community.

As a consequence of these corrections, a detailed study of the uncertainties associated to the method, critical analysis of the instrumentation used and the presentation of measurements of parameters obtained for several radionuclides was done aiming at the completeness of the study presented in this manuscript.

# SUMÁRIO

LISTA DE FIGURAS.....	xii
LISTA DE TABELAS.....	xiv
Capítulo 1 INTRODUÇÃO.....	1
1.1 Apresentação.....	1
1.2 Motivação.....	3
1.3 Objetivos.....	3
Capítulo 2 REVISÃO DA LITERATURA.....	5
2.1 Estado da Arte.....	5
2.1.1 Desenvolvimento do método até os dias de hoje.....	9
2.2 Os primórdios da espectrometria gama.....	11
2.2.1 As primeiras evoluções dos sistemas de detecção.....	12
Capítulo 3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA.....	13
3.1 Fontes de calibração.....	13
3.2 Calibração em energia.....	14
3.2.1 Erros na determinação da energia do pico.....	15
3.3 Calibração em Eficiência.....	16
3.3.1 Eficiência.....	16
3.4 Eficiência do pico de energia total.....	17
3.5 A necessidade de obter as Curvas de Eficiência.....	19
3.6 Interação da Radiação com o material do detector.....	20
3.6.1 Mecanismos e tipos de interação.....	21
3.7 Efeitos de Correlação Angular.....	24
Capítulo 4 TEORIA.....	28
4.1 Teoria para duas radiações.....	28
4.2 Teoria para três radiações (soma tripla).....	30
4.3 Determinação das Eficiências.....	32

4.4 Estimativa de Incertezas .....	34
4.4.1 Propagação de Incertezas para o método pico-soma para duas radiações coincidentes.....	36
4.4.2 Propagação de Incertezas do método pico-soma para três radiações coincidentes.....	41
Capítulo 5 MATERIAIS E MÉTODOS .....	43
5.1 Sistemas de Espectrometria do LNMRI .....	43
5.1.1 Composição experimental 1: Detector tipo poço ou “d2” e eletrônica associada .....	45
5.1.2 Composição experimental 2: Detector planar “d4” e eletrônica associada .....	46
5.1.3 Composição experimental 3: Detector coaxial “d3” e eletrônica associada .....	47
5.1.4 Detalhamento dos componentes experimentais .....	48
5.2 Suporte fixador de geometria.....	54
5.3 Confeção de fontes puntiformes .....	55
5.4 Confeções de curvas de eficiência e medição da atividade .....	57
5.4.1 Estabelecimento da curva de eficiência para o detector “d3” coaxial ..	57
5.4.2 Metodologia de Confeção da curva de eficiência .....	58
5.4.2 Metodologia de obtenção do valor de atividade a partir da curva de eficiência .....	59
5.4.3 Metodologia geral de aplicação do método pico-soma para padronização absoluta de radionuclídeos com decaimento simples .....	60
5.5 Padronização absoluta do $^{22}\text{Na}$ .....	61
5.6 Padronização absoluta do $^{65}\text{Zn}$ .....	62
5.7 Padronização absoluta do $^{60}\text{Co}$ .....	62
5.8 Padronização absoluta do $^{54}\text{Mn}$ .....	62
5.9 Padronização absoluta do $^{121}\text{Te}$ .....	63

5.10 Aplicação de correções .....	64
5.10.1 Tempo Morto .....	64
5.10.2 Radiação de Fundo .....	65
Capítulo 6 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	66
6.1 Discussão da abordagem teórica.....	66
6.2 Padronização Absoluta do <sup>22</sup> Na .....	66
6.3 Padronização Absoluta do <sup>65</sup> Zn .....	68
6.4 Padronização Absoluta do <sup>60</sup> Co .....	70
6.5 Padronização Absoluta do <sup>54</sup> Mn .....	71
6.6 Padronização Absoluta do <sup>121</sup> Te.....	72
Capítulo 7 CONCLUSÕES .....	74
Capítulo 8 CONSIDERAÇÕES FINAIS .....	76
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	77
ANEXO A – Artigo original “Absolute Standardization with a NaI (TI) Crystal – I” ...	83
ANEXO B – Revisão histórica dos detectores .....	88
B.1 Os detectores semicondutores de HPGe: Estado da arte.....	88
B.1.1 Os detectores semicondutores de HPGe .....	88
ANEXO C – Metrologia e suas bases .....	92
C.1 Metrologia .....	92
C.1.1 A Constituição do Sistema Metrológico Nacional e Internacional .....	92
C.1.2 Sistema Metrológico Brasileiro .....	94
C.1.3 Instituto Nacional de Metrologia, Qualidade e Tecnologia (INMETRO). 95	
C.1.4 Estrutura Brasileira da Metrologia Científica e Industrial .....	95
C.2 Metrologia de Radionuclídeos .....	96
C.2.1 A importância dos sistemas de medições .....	97
C.3 Rastreabilidade Metrológica como parâmetro da garantia de qualidade .....	97

C.4 Métodos Absolutos e Relativos de medição de atividade de radionuclídeos .....	99
ANEXO D – Evolução da Espectrometria .....	101
D.1 Os avanços na ciência nuclear .....	101
ANEXO E – Cálculo dos desvios percentuais.....	104

## LISTA DE FIGURAS

Figura 2. 1: Da esquerda p/ direita: G. A. Brinkman e Professor Dr. Aten Jr.....	5
Figura 3. 1: Efeito de empilhamento ocasionado por fonte muito intensa e próxima ao detector indicado pela seta vermelha .....	13
Figura 3. 2: Calibração em energia do sistema de detecção “d3” .....	14
Figura 3. 3: Curva de Eficiência para o detector coaxial “d3” .....	18
Figura 3. 4: Um nuclídeo emissor gama cuja radiação emitida interage com o volume sensível do detector .....	21
Figura 3. 5: Interação da radiação com o material do detector de HPGe e efeitos secundários .....	22
Figura 3. 6: Identificação dos efeitos da interação da radiação com a matéria num espectro idealizado .....	24
Figura 3. 7: Identificação dos efeitos da interação da radiação com a matéria num espectro real de Co-60 .....	24
Figura 3. 8: Efeitos de correlação angular entre os gamas .....	25
Figura 3. 9: Esquema representativo de um radionuclídeo que decaia via emissão de duas radiações $\gamma$ subsequentes.....	26
Figura 4. 1: Esquema de decaimento do $^{60}\text{Co}$ .....	28
Figura 5. 1: Detector de HPGe tipo horizontal com seus componentes.....	45
Figura 5. 2: Detector de HPGe tipo poço real/corte longitudinal.....	46
Figura 5. 3: Detector de HPGe tipo planar .....	46
Figura 5. 4: Divisor de Tensão.....	47
Figura 5. 5: Detector de HPGe tipo coaxial .....	48
Figura 5. 6: Blindagem associada aos sistemas de detecção .....	49
Figura 5. 7: Pré-amplificador sensível a carga .....	50
Figura 5. 8: Sinais de saída dos módulos/ amplificador à direita.....	51
Figura 5. 9: SCA em modo diferencial.....	52
Figura 5. 10: Método das aproximações sucessivas .....	53
Figura 5. 11: Escolha do número de canais em um multicanal .....	54
Figura 5. 12: Suporte fixador de geometria no formato bandeja para as respectivas distâncias: P4 = 20 cm, P3 = 15 cm, P2 = 10 cm, P1 = 5 cm e P0 = 0 cm.....	54
Figura 5. 13: Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes (Adaptado de: OLIVEIRA, E. M.) .....	55

Figura 5. 14: Balança utilizada na confecção de fontes (Mettler e Toledo) .....	56
Figura 5. 15: Fonte puntiforme para padronização absoluta .....	56
Figura 5. 16: Curva de eficiência para padrões radionuclídicos.....	58
Figura B. 1: Técnica de Czochralski e seus componentes.....	89
Figura B. 2: Comparação entre os tamanhos de um cristal de HPGe com 15% e 150% de eficiência em relação a uma bola de golfe.....	90
Figura B. 3: Evolução dos detectores de Ge ao longo dos anos.....	91
Figura C. 1: Diagrama representativo da estrutura Metrológica.....	93
Figura C. 2: Hierarquia do sistema metrológico.....	99
Figura D. 1: Diferença entre um espectro obtido na década de 50 com 200 canais e um obtido por um software moderno em 2017 com mais de 16000 canais (poder de resolução 80 vezes maior). .....	102

## LISTA DE TABELAS

Tabela 2. 1: Apresentação do Método pico-soma em cinco trabalhos publicados .....	5
Tabela 2. 2: Publicações de destaque Internacional com o uso do método pico-soma ..	10
Tabela 5. 1: Fontes puntiformes de: $^{22}\text{Na}$ , $^{54}\text{Mn}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{65}\text{Zn}$ e $^{121}\text{Te}$ para padronização absoluta pelo método pico-soma e método relativo curva de eficiência.....	56
Tabela 5. 2: Padrões utilizados na confecção da curva de eficiência. ....	57
Tabela 5. 3: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área: $^{22}\text{Na}$ . ....	61
Tabela 5. 4: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área: $^{65}\text{Zn}$ .....	62
Tabela 5. 5: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área: $^{60}\text{Co}$ . ....	62
Tabela 5. 6: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área: $^{54}\text{Mn}$ .....	63
Tabela 5. 7: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área: $^{121}\text{Te}$ .....	63
Tabela 6. 1: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o $^{22}\text{Na}$ .....	67
Tabela 6. 2: Incertezas do método pico-soma para o $^{22}\text{Na}$ .....	67
Tabela 6. 3: Incertezas do método curva de eficiência para o $^{22}\text{Na}$ .....	67
Tabela 6. 4: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o $^{65}\text{Zn}$ .....	68
Tabela 6. 5: Incertezas para o método pico-soma para o $^{65}\text{Zn}$ .....	69
Tabela 6. 6: Incertezas do método curva de eficiência para o $^{65}\text{Zn}$ .....	69
Tabela 6. 7: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o $^{60}\text{Co}$ .....	70
Tabela 6. 8: Incertezas para o método pico-soma para o $^{60}\text{Co}$ .....	70
Tabela 6. 9: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o $^{54}\text{Mn}$ .....	71
Tabela 6. 10: Incertezas para o método pico-soma para o $^{54}\text{Mn}$ .....	71
Tabela 6. 11: Incertezas do método curva de eficiência para o $^{54}\text{Mn}$ .....	72
Tabela 6. 12: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o $^{121}\text{Te}$ .....	72

# Capítulo 1

## INTRODUÇÃO

### 1.1 Apresentação

A metrologia de radionuclídeos é uma ciência voltada para a medição e análise de parâmetros nucleares (MANN, 1991). Dentre estes parâmetros, um dos que apresenta maior relevância e importância em se tratando do processo de calibração ou padronização é a grandeza atividade. O Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) possui diversificados sistemas e métodos de padronização absoluta implementados em sua rotina de calibrações, dentre eles o método absoluto conhecido como pico-soma.

Os efeitos soma (que não são empilhamentos de pulsos) já eram conhecidos como uma fonte de erros que surgia como consequência do somatório de radiações gama emitidas simultaneamente pelo núcleo. Diferentemente das somas aleatórias que dependem da taxa de contagem, as chamadas coincidências verdadeiras estão intrinsecamente relacionadas à geometria, e a incidência desses efeitos é maior quando a fonte está apoiada sobre ou próxima ao topo do detector. O poder de percepção do idealizador do método pico-soma permitiu transformar uma propriedade problemática e recorrente em espectrometria, em uma metodologia inovadora de padronização de radionuclídeos emissores de radiação eletromagnética (GILMORE, 1995).

O que caracteriza o uso do método pico-soma como um dos mais vantajosos em relação aos outros métodos de padronização absoluta reside no fato dele apresentar uma facilidade maior para sua aplicação (e isto dependerá do radionuclídeo em questão), além de possibilitar a obtenção de baixos valores para as componentes de incerteza tipo A e principalmente as do tipo B (OLIVEIRA *et al.*, 2012). 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 (incertezas) que muitas das vezes irá expressar o quão consistente é um método de calibração (VIM, 2012, ISO GUM, 2003)

Por tratar-se de um método cuja concepção matemática se deu por intermédio de observações empíricas, é fundamental que este seja posto em prática recorrentemente em padronizações de radionuclídeos que em sua natureza apresentem as características necessárias para a aplicação do método (L'ANUZIATTA, 1998). Além do que,

considerando-se a data de concepção do mesmo, este método ainda é considerado como uma metodologia de padronização recente pela comunidade acadêmica e, portanto, requer sua aplicação contínua nas rotinas dos laboratórios nacionais e internacionais afim de que o mesmo se torne consagrado no meio acadêmico.

Outro objeto de enfoque desta pesquisa refere-se à composição de curvas de eficiência. As curvas de eficiência total permitem obter valores de atividade com menor incerteza, mas podem ser usadas para correções de somas coincidentes em espectros provenientes de detectores de germânio (Ge). As eficiências dos picos de energia são entendidas como sendo a probabilidade de observar uma contagem de radiações eletromagnéticas ou partículas emitidas pelo núcleo e também permitem fazer as correções das somas coincidentes, além de possibilitarem a obtenção do valor de atividade pela interpolação dos valores da energia numa curva de comportamento conhecido e qualidade de ajuste dado pelo parâmetro  $R^2$ . O método relativo da curva de eficiência como é conhecido, terá sua relevância demonstrada ao longo do capítulo 5, cujos valores de atividade serão comparados com aqueles obtidos pelo método pico-soma.

Desde a época da concepção original feita por BRINKMAN *et al.* (1963), um numeroso volume de publicações científicas foram e tem sido feitas por diversos laboratórios nacionais de vários países (ARAÚJO *et al.*, 2016, OGATA *et al.*, 2016, KIM *et al.*, 2003, CAPOGNI *et al.*, 2006, WANG *et al.*, 2001 VIDIMAR *et al.* 2008). No Brasil o método foi implantado e implementado no LNMRI pelo pesquisador Roberto Poledna a partir dos anos 80 (POLEDNA, 1988).

Em critério motivacional, 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 são compatíveis 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, DA SILVA *et al.*, 2006, DIAS *et al.*, 1995).

O número de citações nacionais e internacionais contabilizados pelas plataformas *Scopus*, *Scielo*, entre outras, tem contribuído para a evidenciação do grupo de espectrometria gama do LNMRI e conseqüente fortalecimento do método, baseado no volume de trabalhos publicados com qualidade garantida pelos periódicos de

destaque internacional tais como: *Metrologia, Applied Radiation and Isotopes, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* entre outros (ARAÚJO *et al.*, 2015, DE ALMEIDA *et al.*, 2007, DA SILVA *et al.*, 2006, OLIVEIRA *et al.*, 2012).

## 1.2 Motivação

Levando em consideração a concepção original do método pico-soma feita por BRINKMAN *et al.* (1963) (ANEXO A) é possível observar certas inconsistências teóricas e conceituais na proposta apresentada em publicação na *Applied Radiation Isotopes* do mesmo ano. Isto se deve ao fato de que à época em que o método fora criado, os sistemas de detecção possuíam limitações intrínsecas que inviabilizavam a medição dos parâmetros nucleares de maneira fidedigna (SIEGBAHN, 1965).

Ciente disto, a principal motivação deste estudo se baseia na apresentação de uma interpretação teórica mais aperfeiçoada para o método pico-soma, objetivando o estabelecimento de um modelo científico robusto que considere todas as condições de validade para a aplicação do método. Um fator que será levado em consideração para a avaliação da melhoria dos valores medidos será a evolução tecnológica dos sistemas de detecção ao longo dos anos, onde serão atribuídos e considerados os fatores de interferência positiva da instrumentação na determinação do valor da atividade e suas incertezas.

Uma vez que o embasamento teórico esteja bem estabelecido, será apresentada uma compilação de dados experimentais que comprovam os argumentos estabelecidos pela proposta desenvolvida. Uma etapa importante será a recapitulação de alguns resultados (publicados em ocasiões anteriores) obtidos por intermédio de aplicação do método, o que torna irrefutável algumas considerações teóricas aqui apresentadas. Considerando não apenas a demonstração matemática da nova teoria, mas também a comprovação experimental da mesma espera-se poder aumentar a credibilidade do uso do método para padronizações diversas.

## 1.3 Objetivos

Nas etapas lógicas desenvolvidas neste trabalho apresentam-se os seguintes objetivos específicos:

1. Desenvolver as condições de validade do modelo científico teórico proposto na motivação deste manuscrito, bem como o arcabouço matemático necessário para a concepção da teoria;

2. Realizar o estudo de estabilidade dos sistemas de medição da espectrometria gama disponíveis no LNMRI utilizados para as medições;
3. Estabelecer as curvas de eficiência utilizadas para medições relativas da grandeza atividade.
4. Medir a grandeza atividade em três sistemas compostos por detectores de HPGe para os radionuclídeos:  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ , e  $^{121}\text{Te}$ ;
5. Comparar as metodologias absoluta e relativa por intermédio dos resultados experimentais e analisar criticamente cada caso;
6. Propagar e avaliar criticamente os valores de incertezas e fazer um estudo detalhado de cada componente e suas limitações e/ou possíveis melhorias;
7. Avaliar criticamente a aplicação do método pico-soma no cenário dos últimos anos de desenvolvimento de pesquisa acerca do método e suas limitações;
8. Estabelecer uma metodologia de padronização absoluta pelo método pico-soma corrigido para que a mesma seja incorporada à rotina de calibração do LNMRI ocasionalmente.

## Capítulo 2

### REVISÃO DA LITERATURA

#### 2.1 Estado da Arte

O método pico-soma tem seu surgimento registrado na década de 60, quando os autores Gregorius Antoine Brinkman, J. Th. Vennboer e o ilustre catedrático Prof. Dr. A. H. W. Aten, Jr., publicaram no *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* no ano de 1963 o trabalho intitulado “*Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal*”.

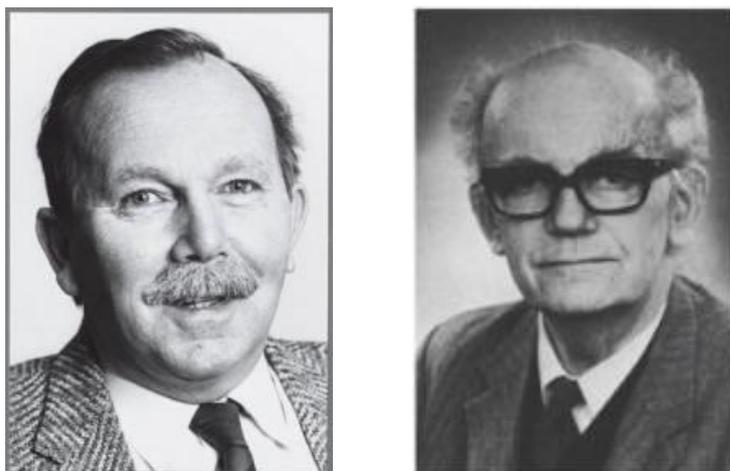


Figura 2. 1: Da esquerda p/ direita: G. A. Brinkman e Professor Dr. Aten Jr.

Este trabalho foi subdividido e apresentado em cinco partes conforme mostra a tabela 2.1:

**Tabela 2. 1: Apresentação do Método pico-soma em cinco trabalhos publicados**

“ <i>Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal</i> ”	
I	Calibration by Means of a Single Nuclide
II	Determination of the Total Efficiency
III	Calibration of $\beta^+$ Emitters
IV	Determination of the Photoelectric Efficiency
V	Calibration of Isotopes with Complex Decay Schemes

Cada trabalho apresenta um estudo de caso para cada tipo de interação e propriedades a serem consideradas na determinação da atividade absoluta, por exemplo. O método que à época fora considerado inovador, pois chamava a atenção sobre sua simplicidade de aplicação, teve seu escopo baseado em autores de outros trabalhos que

já faziam o estudo do “efeito soma”, mas, aplicados na determinação dos valores das eficiências de detecção.

Se analisarmos a bibliografia consultada por Brinkman podemos citar quatro autores que influenciaram fortemente na concepção do método: SHAPIRO e HIGGS (1957) com uma publicação intitulada “*NaI Summing Spectrometer*” (SHAPIRO, 1957), GUPTA e JHA (1955), com uma publicação sobre “*Studies with the scintillation spectrometer*” (GUPTA, 1955), ASHE e McCARREY (1960) com a pesquisa “*Method for Determining the Photopeak Efficiency of Scintillation Counters*” (ASHE, 1960) e finalmente DIETER e OTT (1958) com a publicação intitulada “*Eine einfache methode zur bestimmung der ansprehwahrscheinlichkeit eines NaJ-Lochkristalls*<sup>1</sup>” (DIETER, 1958).

Essencialmente todos os três primeiros trabalhos citados no parágrafo anterior estavam interessados na determinação da eficiência de detecção para um detector tipo poço de iodeto de sódio ativado com Tálcio (NaI(Tl)). A ideia na época era determinar num primeiro momento a eficiência e, a partir de então chegar ao valor de atividade. Isto se deve ao fato de que o material radioativo não era comercializado e daí o baixo interesse na determinação da atividade. Consultando as referências utilizadas por estes autores podemos encontrar grandes nomes tais como Kai Siegbahn<sup>2</sup> que foi prêmio Nobel no ano de 1981, cuja obra por ele escrita faz menção a todos estes estágios de evolução científica das medições e obtenções de parâmetros nucleares.

Cabe observar que o trabalho do alemão OTT (1958) se destaca dos demais pelo fato de considerar a “probabilidade de detecção”, a qual vai interessar fortemente as discussões posteriores a respeito da correção teórica a qual será feita referência no capítulo 4. Em visita ao laboratório do PTB, o então diretor da instituição da época alertou ao pesquisador Roberto Poledna para o início do desenvolvimento de pesquisas relacionadas à probabilidade de detecção. Por enquanto, o interesse se restringe a analisar as literaturas da época e qual embasamento elas fornecem para o método pico-soma até então.

Retomando os trabalhos publicados por Brinkman, sua primeira contribuição teórica nos é apresentada no trabalho nº I (BRINKMAN, 1963) que é pré-requisito para

---

<sup>1</sup> Em português: “Um método simples para determinar a probabilidade de detecção de um cristal NaI(Tl) tipo poço”

<sup>2</sup> Kai Manne Börje Siegbahn foi um físico sueco. Recebeu o Nobel de Física de 1981, pela descoberta de violações dos princípios fundamentais de simetria no decaimento de mesons-K neutros.

o pleno entendimento dos trabalhos subsequentes, e é nesta publicação que está o foco de interesse desta pesquisa (os demais trabalhos serão discutidos oportunamente em outro momento). A partir deste ponto é importante que o leitor faça o acompanhamento deste subitem concomitantemente ao ANEXO A que expõe o artigo original. Nele é apresentada a metodologia para a padronização de radioisótopos que decaiam via emissão de duas radiações gama em coincidência utilizando um cristal de NaI(Tl) visando a obtenção do parâmetro atividade que pode ser dado pela equação 1.1:

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T \quad (1.1)$$

Onde  $A_1$  e  $A_2$  são as áreas dadas pelos picos de energia fotoelétrica 1 ( $\gamma_1$ ) e 2 ( $\gamma_2$ ) respectivamente e,  $A_{12}$  é a área do pico-soma e  $T$  é a área total do espectro. O método é testado experimentalmente para dois radioisótopos sendo eles:  $^{60}\text{Co}$  e  $^{46}\text{Sc}$ .

Na introdução de seu artigo, BRINKMAN (1963) comenta e cita as quatro referências (apresentadas no quarto parágrafo deste subitem) que embasam o seu trabalho e explicita que nestas referências o procedimento para obter a atividade absoluta ou mesmo o valor da eficiência fica comprometido pela limitação que cada um apresenta.

Posteriormente o autor afirma que, será provado que a atividade absoluta de um radioisótopo que emita duas radiações gama em coincidência pode ser obtida através das áreas dos picos de energia total e do pico-soma e também da extrapolação para zero. Prosseguindo, ele afirma que *“Não é necessário que as duas energias sejam aproximadamente iguais ou que ambos os raios  $\gamma$  ocorram com 100% das desintegrações como ocorre no caso dos emissores  $\beta^+$  e dos isótopos  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{88}\text{Y}$ ”* (BRINKMAN, 1963).

Partindo deste ponto, as deduções são apresentadas a partir de duas fórmulas primárias que relacionam a atividade, as eficiências de absorção fotoelétrica e as eficiências totais para  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  que levam em conta os efeitos de produção de pares, absorção fotoelétrica e Compton. Do desenvolvimento das duas equações se chega à fórmula apresentada em 1.1 (BRINKMAN, 1963).

Acompanhando ainda o ANEXO A, o autor propõe as deduções para duas radiações coincidentes nos itens: a) onde ambos os gamas ocorrem em 100% das desintegrações; b) em que um dos gamas ocorre com uma fração  $p$  e o outro com 100% das desintegrações; c) em que ocorram três gamas coincidentes em 100% das desintegrações. Ele cita ainda um caso específico para o  $^{22}\text{Na}$  mas reforçando que o

terceiro gama deva ocorrer com 100%. Analisando os resultados de diversas calibrações feitas utilizando o método ao longo dos anos, não se percebe a necessidade da imposição do percentual de 100% para um ou mais gamas envolvidos no decaimento. Tal inferência acaba sendo utilizada como condição de validade ao longo das demonstrações, o que acaba gerando um erro conceitual, que não interfere no resultado matemático propriamente dito, porém, limita o usuário erroneamente.

Como comentário adicional, o reforço das ideias que fixam um percentual de 100% para a ocorrência dos gamas não é claro e fica bastante confuso conforme o avanço da exposição do texto. No capítulo de discussão dos resultados será feito o confronto das ideias apresentadas no manuscrito original e as apresentadas na correção teórica que leva em conta uma abordagem baseada em probabilidades.

Prosseguindo a leitura do artigo, o autor faz a correção do parâmetro de correlação angular visto que o  $^{60}\text{Co}$  apresenta dois gamas correlacionados e ressalta que os mesmos praticamente desaparecem considerando as medições feitas com a fonte apoiada diretamente sobre o detector e que tais correções são necessárias apenas quando se utiliza um detector tipo poço (geometria  $\approx 4\pi$ ), àquela cujo Brinkman faz uso para a aquisição de dados experimentais (BRINKMAN, 1963). Entretanto, esta consideração é errônea sob o ponto de vista experimental uma vez que as correções deverão ser feitas onde ocorrem consideráveis perdas, que é o caso de detectores com a fonte apoiada sobre sua superfície. Isto será discutido melhor nos tópicos posteriores.

Chegando a conclusão do artigo, pode-se observar o nível de precisão dos resultados com incertezas em torno de 5% para o valor da atividade absoluta. Se fizermos uma análise dos equipamentos dos quais o autor pôde fazer uso, percebemos que 5% não é um valor tão impreciso. À época as válvulas eletrônicas funcionavam com componentes passivos (resistores e capacitores) com tolerâncias de  $\pm 20\%$  quando novos. Pode-se concluir que os resultados obtidos por Brinkman naquela época com tão poucos recursos (um multicanal de apenas 100 canais) foram um sucesso (BRINKMAN, 1963).

Esta leitura interpretativa encerra a primeira parte do panorama histórico que congrega as literaturas predecessoras à concepção do método e os argumentos mais relevantes do artigo original. Passaremos agora à etapa de exposição das literaturas que foram desenvolvidas no período pós-concepção que compreende os anos de 1967 até os anos subsequentes.

### 2.1.1 Desenvolvimento do método até os dias de hoje

No ano de 1967, Sutherland e John Buchanan publicam um trabalho para fontes não puntiformes testando a validade do método pico-soma aplicando-o ao  $^{125}\text{I}$  e  $^{60}\text{Co}$  e comprovam a validade do mesmo (SUTHERLAND, 1967).

Em 1973 Hutchinson testa a validade do método utilizando dois cristais de NaI tipo poço na geometria  $4\pi$  (um sobre o outro) e comprova a compatibilidade do mesmo com o método de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  (HUTCHINSON, 1973).

No ano subsequente de 1974, Donald Horrocks publica um trabalho contendo considerações teóricas sobre a padronização do  $^{125}\text{I}$  pelo método de coincidência e considerando como referência o método de somas de Eldridge (HORROCKS, 1974).

Em 1989 os japoneses Takao Kawano e Hiroshi Ebihara testam o método para fontes não puntiformes de  $^{60}\text{Co}$  e atestam diferenças que inviabilizam o método para este tipo de fonte (KAWANO, 1989).

Logo em seguida, no ano de 1990, Brinkman publica um artigo em resposta à pesquisa dos japoneses admitindo as falhas no método e apresenta uma fórmula corrigida, mas salientando que a eficiência do detector é diferente para o posicionamento da fonte em regiões distantes do centro do mesmo (ODERKERK, 1990).

As cinco publicações apresentadas nos primeiros parágrafos deste subitem revelam o interesse dos grupos de pesquisa fora da Holanda que se empenharam em trabalhar nos testes de aperfeiçoamento e comprovação do método pico-soma. Desde então, com o advento da evolução da eletrônica e da concepção de novos detectores mais adequados para a os propósitos da espectrometria (desenvolvimento do detector de HPGe em 1973) foi possível evoluir em grande escala as pesquisas envolvendo o método de padronização pico-soma. Um histórico breve, porém, detalhado, encontra-se no ANEXO C deste manuscrito a fim de estabelecer as evoluções dos detectores de Ge desde a sua criação.

Hoje é possível estimar cerca de 300 trabalhos que utilizam o método parcial ou integralmente em padronizações de diversos radionuclídeos em nível mundial. Em todo o caso, é difícil estimar exatamente quantos trabalhos utilizam o método devido ao volume de periódicos existentes mundialmente. Dentre esta gama de publicações, considerando apenas os três periódicos de maior influência no âmbito de medições ou

aplicações em Física Nuclear, destacam-se muitos trabalhos produzidos pelo LNMRI desde a década de 80 impulsionados pela orientação do difusor do método no Brasil, Roberto Poledna. A tabela a seguir mostra todas as publicações de maior destaque internacional nos últimos anos:

**Tabela 2. 2: Publicações de destaque Internacional com o uso do método pico-soma**

Nome Principal	Ano	Título/Journal
POLEDNA R.	1988	“Determination of activity concentration of $^{125}\text{I}$ solution by (X gamma) Coincidence counting and an Efficiency Extrapolation Curve” <i>Nucl. Instr. and Meth. A</i>
DIAS, M. S.	1995	“Accidental Summing Corrections in $^{125}\text{I}$ Activity Determination by the Sum-Peak Method” <i>Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A</i>
BERNARDES E. M. O.	2002	“Ho-166m a multigamma standard for the calibration of Ge spectrometers” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
DA SILVA, M. A. L.	2006	“Standardization and decay data determinations of $^{125}\text{I}$ , $^{54}\text{Mn}$ and $^{203}\text{Hg}$ ” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
ALMEIDA, M. C. M.	2007	“Absolute disintegration rate and 320 keV $\gamma$ -ray emission probability of $^{51}\text{Cr}$ ” <i>Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A</i>
IWAHARA, A.	2009	“Primary activity standardization of $^{57}\text{Co}$ by sum-peak method” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
IWAHARA, A.	2010	“Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of $^{22}\text{Na}$ ” <i>International Conference on Nuclear Data for Science and Technology</i>
LOPES R. T.	2012	“Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of $^{22}\text{Na}$ ” <i>Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A</i>
DE OLIVEIRA, E. M.	2012	“Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of $^{22}\text{Na}$ ” <i>Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A</i>
REZENDE E. A.	2012	“Radioactivity measurements of $^{177}\text{Lu}$ , $^{111}\text{In}$ and $^{123}\text{I}$ by different absolute methods” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
ALMEIDA, M. C. M.	2016	“Determination of Impurities in $^{124}\text{I}$ samples by high resolution gamma spectrometry” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
RUZZARIN A.	2016	“Activity determination of a $^{201}\text{Tl}$ solution by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ and sum-peak coincidence methods” <i>Journal of Physics Conference Series</i>
DA SILVA R. L.	2016	“Metrological activity determination of $^{133}\text{Ba}$ by sum-peak absolute method” <i>Journal of Physics Conference Series</i>
ARAÚJO, M. T. F.	2016	“Absolute Standardization of the impurity $^{121}\text{Te}$ associated to the production of the radiopharmaceutical $^{123}\text{I}$ .” <i>Appl. Radiat. and Isotopes</i>
ARAÚJO, M. T. F.	2016	“Absolute Standardization of the impurity $^{121}\text{Te}$ associated to the production of the radiopharmaceutical $^{123}\text{I}$ .” <i>Journal of Physics Conference Series</i>
ARAÚJO, M. T. F.	2017	“Absolute standardization of $^{22}\text{Na}$ , $^{65}\text{Zn}$ and $^{60}\text{Co}$ by sum-peak method and critical analysis of instrumentation” <i>Journal of Physics Conference Series</i>

## 2.2 Os primórdios da espectrometria gama

Para compreendermos o processo de concepção do método o mais fiel possível, é necessário ir além da análise da literatura da qual o autor do método fez uso, e questionar criticamente quais eram as suas limitações quanto à disponibilidade de recursos relacionados aos dispositivos eletrônicos da época. Vale lembrar que com o advento da eletrônica moderna, consideráveis evoluções no desenvolvimento de equipamentos foram obtidas e conseqüentemente, modificações na forma e na qualidade da obtenção de parâmetros nucleares.

As literaturas que embasam o primeiro artigo de Brinkman tiveram suas publicações estabelecidas na década de 50. A espectrometria clássica estava em desenvolvimento, e o principal elemento de destaque era o uso de detectores de estado sólido (podemos destacar o uso dos detectores de NaI) para detecção das radiações ionizantes que interagem com o volume sensível dos mesmos (SIEGBAHN, 1965).

Segundo GUPTA e JHA (1955) os sistemas compostos por espectrômetros<sup>3</sup> cintiladores da época mostravam-se “extremamente potentes” quanto ao seu poder de detecção e medição das radiações gama. Por apresentarem “alta eficiência de detecção” na medição das radiações gama, os resultados advindos destas medições viabilizavam o desenho dos esquemas de decaimento radioativo dos radioisótopos de interesse, principalmente aqueles que apresentavam um decaimento em cascata.

Outros espectroscopistas da época tais como SHAPIRO e HIGGS (1957) também salientam as vantagens no uso dos detectores de estado sólido de NaI(Tl), chamando a atenção para o uso de detectores do tipo poço (do inglês *well-type*) que são bastante úteis na análise de espectros gama. Um ponto que nos chama a atenção é que a eletrônica na década de 50 ainda era recente sob o ponto de vista de evoluções tecnológicas e, por isso, revelava uma limitação quanto aos sistemas utilizados pelos grupos de física experimental.

---

<sup>3</sup> Composto por um cristal tipo poço de NaI(Tl) de  $1\frac{1}{2}'' \times 1\frac{1}{2}''$  montado sobre uma fotomultiplicadora E.M.I., tipo 6260, um pré-amplificador, um amplificador Bell e Jordan modificado *non-overload*, um analisador multicanal projetado por Fairstein e Porter com a janela mínima em 0,75 volts, escalar, e uma fonte de alta tensão negativa altamente estabilizada (bastante precário se comparado aos sistemas disponíveis em 2017) (GUPTA, 1955).

### **2.2.1 As primeiras evoluções dos sistemas de detecção**

A espectroscopia nuclear pode ser rastreada até cerca de cem anos atrás. Embora a existência de radiação alfa, beta e gama emitida por elementos radioativos tenha se tornado conhecida logo após a descoberta da radioatividade, o trabalho espectroscópico não começou antes de 1911 (SIEGBAHN, 1965).

A invenção da válvula diodo de dois elementos (diodo a vácuo) feitos por Fleming em 1904 e a consequente descoberta da válvula tríodo que é o equivalente mais próximo do transistor por Lee de Forest em 1906, representou um grande avanço sobre os detectores de alta frequência, o que marcou a era da eletrônica propriamente dita. Com o advento do transistor no final da década de 40 (pós-guerra), o desenvolvimento da tecnologia dos circuitos integrados cerca de 20 anos depois possibilitariam o desenvolvimento dos primeiros módulos eletrônicos tais como: contadores de radiação alfa, beta e gama, os primeiros monocanais, entre outros (BENCHIMOL, A. 1995, SIEGBAHN, 1965).

O primeiro detector de estado sólido de sulfeto de zinco dopado com prata (ZnS(Ag)) foi usado por Rutherford em 1910 em um experimento de espalhamento alfa (CARUSO, 2006). O detector era composto de um tipo específico de material chamado cintilador: são materiais sólidos, líquidos ou gasosos que produzem quantas de luz decorrentes da interação da radiação com a matéria. Devido à ausência de condições experimentais satisfatórias, o método foi abandonado por cerca de 30 anos (SIEGBAHN, 1965).

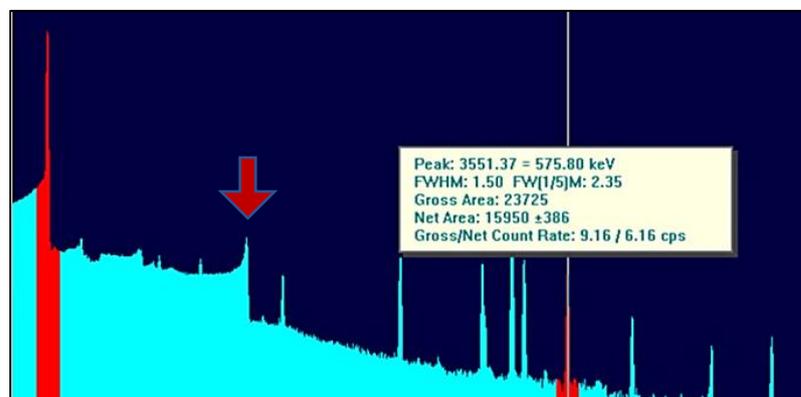
## Capítulo 3

# FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

### 3.1 Fontes de calibração

Tal como ocorre com os dados nucleares, as fontes utilizadas para a calibração devem ser adequadas para esta finalidade. Para a calibração em energia e da largura do pico, basta que as energias dos raios-gama (ou raios X) que ela emite sejam conhecidas por um grau de precisão satisfatório, uma vez que a intensidade da fonte não precisa ser conhecida. Para a calibração em eficiência, é essencial que sejam utilizados núclídeos para os quais as probabilidades de emissão de raios gama sejam conhecidas com precisão e que seja utilizada uma fonte de atividade conhecida. Sempre que possível, as fontes certificadas quanto ao seu conteúdo radioativo devem ser usadas (GILMORE, 1995).

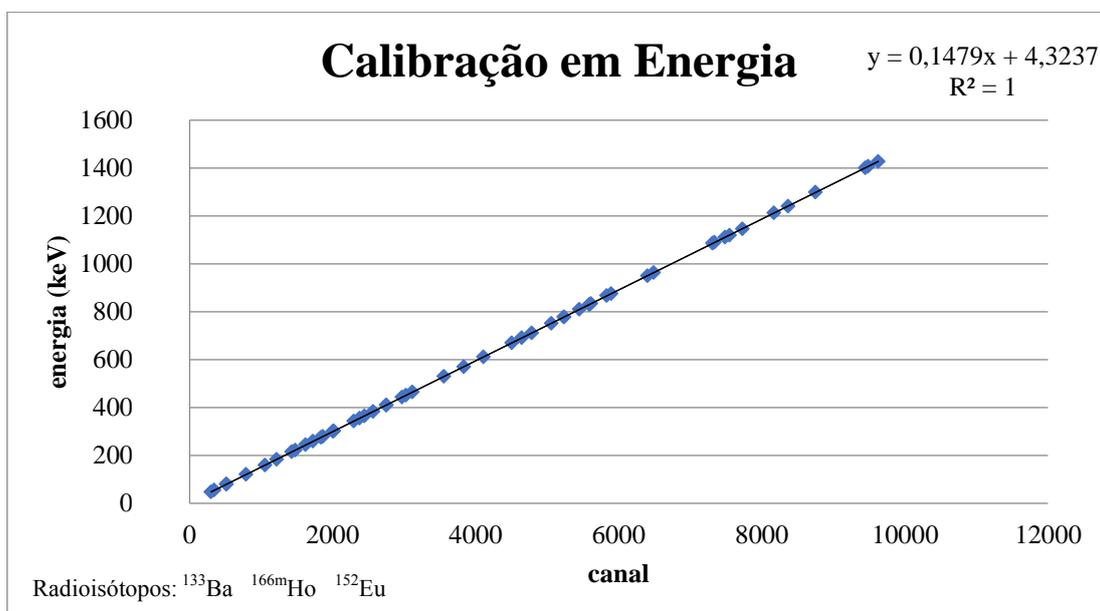
A eficiência de contagem de uma fonte vai depender em princípio da sua forma e densidade. A conclusão óbvia é que as fontes de calibração devem ser preparadas de modo a ter a mesma forma e densidade do padrão que será comparado a elas. As diferenças de densidade costumam ser pequenas e podem ser toleradas. No entanto, isso sempre deve ser estabelecido por medida real e não apenas por um valor assumido. As calibrações não serão muito afetadas pela intensidade da fonte, desde que esta não seja alta o suficiente para causar problemas como os de empilhamento, altas taxas de tempo morto, entre outros. No entanto, é conveniente usar uma fonte que forneça um espectro com contagens suficientes dentro do período de decorrência da calibração. Fontes de  $10^4$  Bq, para calibrações próximas ao detector, e  $10^6$  Bq para regiões mais afastadas, seria o razoável (GILMORE, 1995).



**Figura 3. 1: Efeito de empilhamento ocasionado por fonte muito intensa e próxima ao detector indicado pela seta vermelha**

### 3.2 Calibração em energia

O objetivo da calibração em energia é obter uma relação entre a posição do pico no espectro e a energia correspondente dos fótons gama. Isso normalmente é realizado antes da medição, de forma preliminar. A calibração em energia é realizada medindo o espectro de uma fonte emissora de raios X e gama de energia precisamente conhecida e comparando a posição do pico medido com a energia correspondente (GILMORE, 1995). As fontes utilizadas nas etapas de medições desta pesquisa foram confeccionadas pelo setor de preparação de fontes do LNMRI a partir de uma solução mãe fornecida por um centro produtor nacional ou internacional. Seja qual for a fonte utilizada, é aconselhável assegurar que as energias de calibração estejam todas cobertas pelo número de janelas do espectrômetro que irá ser usado (L'ANNUZIATA, 1998).



**Figura 3. 2: Calibração em energia do sistema de detecção “d3”**

Na prática, é suficiente medir o espectro em um tempo o suficiente para obter uma boa precisão estatística para os picos a serem utilizados para a calibração. O processo de calibração envolve a marcação dos picos a serem usados e sua energia verdadeira. O computador pode então pesquisar os picos, medir a posição do pico em uma fração de um canal e deduzir a relação canal/energia (GILMORE, 1995). (Nos sistemas MCA mais antigos, normalmente seria necessário digitar o número máximo de canais). Nestas circunstâncias, é necessária certa habilidade para estimar visualmente a posição real do pico entre os canais. Se o MCA só pode lidar com os números de canal

integral, a energia fornecida pelo operador deve ser ajustada para levar isso em consideração (L'ANNUZIATA, 1998).

### **3.2.1 Erros na determinação da energia do pico**

Geralmente se assume que o posicionamento de uma amostra em relação ao detector será feito em um eixo normal ao topo do detector. Isto não impede que o posicionamento seja feito de outro modo, entretanto, alguns fenômenos indesejáveis podem ocorrer quando se adota essa prática (GILMORE, 1995). Ao considerar a interação da radiação gama com o detector, ocorre a produção de elétrons rápidos que, em seguida, se dispersam dentro do detector criando “vacâncias eletrônicas”. Estes são então coletados aplicando um campo elétrico. Daí resulta, pois, que os elétrons rápidos primários serão modificados por este campo. Os elétrons que se deslocam fora do campo serão mais lentos, e aqueles que viajam pelo campo serão acelerados. Apenas os elétrons que viajam normalmente para a direção do campo não serão afetados. Esta alteração na energia elétrica primária, que é chamado de efeito de incremento de campo, será refletida no número “vacâncias eletrônicas” produzidas e, portanto, na posição do pico no espectro gama. Isso aparecerá então como um erro na energia gama medida. Para fótons de baixa energia, a liberação de elétrons primários após a interação será quase isotrópica e o efeito de incremento de campo tenderá a se cancelar (GILMORE, 1995). Em maior energia, a maioria dos elétrons primários tenderá a se mover na direção geral do raio-gama que os produziu e essa direção em relação ao campo do detector é importante. No caso das medições aqui propostas, este tipo de efeito não se manifesta visto que a intensidade das fontes é bem moderada, mas, é importante abordar este aspecto a fim de aumentar o conhecimento da interação sistema-fonte.

O efeito é mais claramente visto com detectores com um gradiente de campo uniforme, tais como detectores planares. Felizmente, o erro é relativamente pequeno. Detectores coaxiais abertos podem não ter nenhum erro de incremento de campo visto que na geometria da fonte de saída normal, os raios gama tendem a percorrer perpendicularmente o campo elétrico. Nos detectores de extremidade fechada, a situação é complicada porque o campo elétrico em algumas regiões será perpendicular e em outros, paralelo à direção do raio gama. Os picos de escape simples e duplos devem, portanto, mostrar um pouco ou nenhum deslocamento na energia (GILMORE, 1995).

Também pode haver diferenças na coleta de cargas, dependendo de onde o raio-gama interage com o detector. Mais uma vez, isso causará variações de energia. O erro

de energia real na prática será uma combinação de incremento de campo e erros de coleta de cargas (L'ANNUZIATA, 1998).

Na prática, as calibrações em energia que respeitam as condições de geometria bem estabelecidas não nos gerarão grandes preocupações com relação a este tipo de erros. A magnitude da variação de energia é menor que 0,1 keV para raios gama de 1500 keV ou menos, semelhante às incertezas da estimativa de energia gama. Normalmente, esses erros serão cancelados pela não linearidade integral do sistema (L'ANNUZIATA, 1998).

### 3.3 Calibração em Eficiência

#### 3.3.1 Eficiência

Antes de avançar neste tópico, é importante definir de forma clara o significado do termo “Eficiência” que geralmente acaba por gerar muita confusão no meio acadêmico. Podemos defini-lo de várias formas, dependendo de como desejamos usá-lo, mas em princípio temos três tipos de definição:

- A **eficiência do detector** é uma medida de desempenho geral que relaciona a eficiência da detecção de uma radiação gama de 1332 keV do  $^{60}\text{Co}$  do detector utilizado com a de um detector do tipo NaI(Tl) tamanho 3x3'' situado à distância de 30cm de distância com uma taxa total de contagens de 1000 eventos por segundo (GILMORE, 1995).
- Na espectrometria gama, a principal intenção é relacionar a área de pico do espectro com a quantidade de radioatividade que este pico representa. Para isso, precisamos da **eficiência do pico de energia total**. Isso relaciona a área do pico com o número de raios-gama emitidos pela fonte e deve depender da disposição geométrica entre a fonte e o detector (GILMORE, 1995).
- A **eficiência total absoluta** relaciona o número de contagens total com o número de contagens detectadas de raios gama emitido pela fonte em qualquer lugar do espectro. Isso leva em conta o espectro completo e também o pico de energia total e todas as absorções incompletas representadas pelo “continuum” Compton (GILMORE, 1995).
- A **eficiência intrínseca** (pico de energia total) relaciona as contagens no espectro com o número de fótons gama incidentes no detector. Esta eficiência é

um parâmetro básico do detector e é independente da geometria da fonte/detector (GILMORE, 1995).

Pode-se imaginar que, conhecendo todos os processos de interação envolvidos, bem como os coeficientes de absorção do material do detector e a atenuação dentro do encapsulamento, seria possível calcular a eficiência do detector a princípio. Infelizmente, existem limitações nas ferramentas matemáticas à nossa disposição e a consistência com que os detectores podem ser fabricados se opõe a tais cálculos, mesmo considerando a alta qualidade disponível nos dias de hoje para estes materiais. Atualmente, as calibrações em eficiência são realizadas nos espectros reais de raios gama. No entanto, estão sendo feitos esforços para a provisão de dados pelos fabricantes para uma calibração com modelagem teórica com cada detector fornecido, de modo que a necessidade de calibração pelo usuário possa diminuir no futuro (GILMORE, 1995).

### 3.4 Eficiência do pico de energia total

Esse é o parâmetro de maior significado na espectrometria de gama. Tão importante que é abordado integralmente por todos os autores das literaturas que fomentaram e desenvolveram o método pico-soma. A determinação da eficiência de detecção é até os dias de hoje abordada em publicações atuais nos grandes periódicos de destaque internacional. Vejamos porque este parâmetro é tão relevante em espectrometria. Primeiramente, iremos denotar a “eficiência” como sendo representada pela letra grega épsilon ( $\varepsilon$ ) sozinha e subscrevê-la com a letra 'T' ( $\varepsilon_T$ ) para indicar a eficiência total quando necessário.

O cálculo da eficiência de pico de energia total é direto e definido como sendo a razão entre o número de contagens detectadas em um pico pelo número de emissões da fonte (GILMORE, 2013).

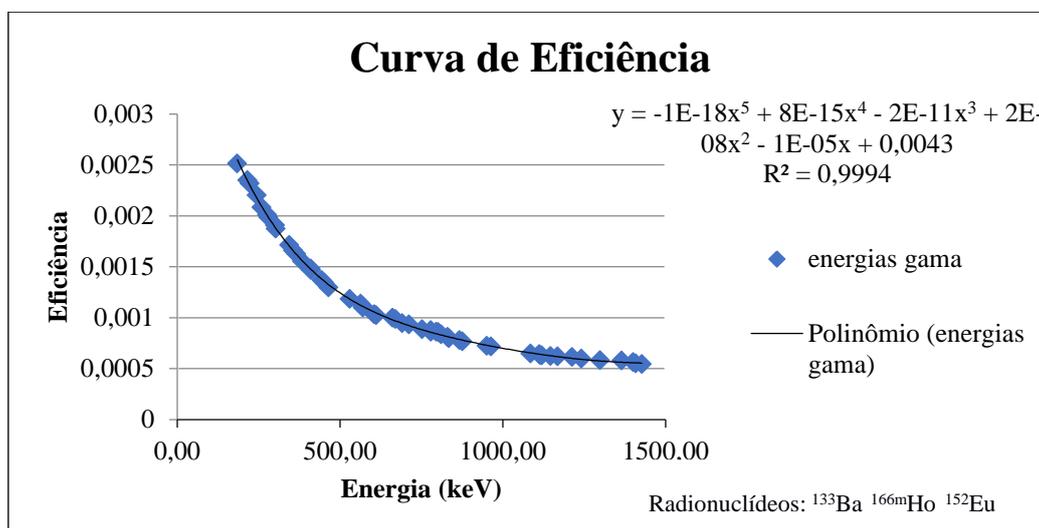
$$\varepsilon = \frac{R}{(S \times P_\gamma)} \quad (3.1)$$

Em que R é a taxa de contagem do pico de energia total dado em contagens por segundo, S é a atividade da fonte em desintegrações por segundo (em becquerel) e  $P_\gamma$  é a probabilidade de emissão de uma radiação gama específica. A atividade da fonte utilizada na equação deve ser corrigida para a data da preparação da fonte em relação à solução mãe, se necessário, e durante o procedimento de medição.

É convencional construir uma curva de eficiência a partir da medição de emissores gama cujos valores originarão um gráfico que irá relacionar a eficiência em

função da energia. A Figura 3.3 mostra a curva para um detector coaxial em escala comum. É traçada uma curva que acompanha o comportamento e a distribuição dos pontos medidos cuja equação é dada para o melhor ajuste matemático disponível. Além disso, o fator  $R^2$  denota o quão correlacionados estão os dados, sendo o melhor comportamento obtido para  $R^2 \sim 1$ . O intervalo escolhido compreende a faixa de 100 a 1450 keV.

Aqui cabe fazer uma comparação da obtenção da grandeza atividade por dois métodos: curva de eficiência e método pico-soma. O que torna viável a aplicação do método pico-soma é a resolução oferecida pelos detectores de HPGe para marcação das áreas que serão utilizadas na determinação da grandeza atividade. Por outro lado, no quesito eficiência, estes detectores deixam a desejar quando estamos considerando radionuclídeos cuja predominância energética ocorre para energias abaixo dos 100 keV. Para exemplificar, considerando a medição do  $^{241}\text{Am}$ , este apresentará uma boa estimativa de área no espectro para o raio gama de 59 keV, entretanto, a eficiência de detecção deixará a desejar levando a uma precisão insatisfatória quando comparada ao método pico-soma. Existem, no entanto, outros tipos de detectores que podem gerar curvas para baixas energias<sup>4</sup> com uma eficiência mais adequada, como o caso do CdTe (Telureto de Cádmio).



**Figura 3. 3: Curva de Eficiência para o detector coaxial “d3”**

<sup>4</sup> Os detectores nas curvas de eficiência apresentam três regiões – alta, média e baixa energia

Cada isótopo radioativo emite raios X e gama que lhe são próprios e isto permite sua identificação e a medida da sua quantidade energética. Com a obtenção da curva de eficiência (ou as equações matemáticas equivalentes), os valores de eficiência podem ser interpolados para fornecer os dados necessários para um radionuclídeo específico pelo inverso da Equação (2) para converter a área do pico em atividade (GILMORE, 1995).

Além do que, os espectros de calibração devem ter alta qualidade, cujas condições experimentais que regem a medição dos padrões que irão compor a curva devem ser as mais estáveis possíveis. Numa situação idealizada, teríamos fontes puntiformes que emitiriam um raio gama por vez com baixa taxa de contagem e distância razoavelmente grande em relação ao detector. Há várias razões pelas quais a curva de calibração em eficiência pode não ser relevante na prática quando confrontada com uma amostra (GILMORE, 1995).

- - Diferentes distâncias fonte-detector
- - Diferentes formatos da fonte
- - Efeito de absorção inerente à fonte
- - Somas aleatórias devidas a altas taxas de contagem
- - Efeitos soma pela distância fonte-detector ser muito próxima
- - Decaimento da fonte durante a medição
- - Problemas eletrônicos de temporização

### **3.5 A necessidade de obter as curvas de eficiência**

Antes de prosseguir para discutir outros fatores que podem afetar as medições, vale a pena considerar se, na prática, é necessária a obtenção das curvas de eficiência. Em campos como a metrologia ambiental, quase todas as medições são feitas comparativamente. Amostras e padrões são medidos em condições idênticas e suas áreas de pico no espectro são comparadas diretamente. O cálculo implica implicitamente na obtenção da eficiência, incluindo todos os fatores susceptíveis de causar um erro. Novamente, as medidas ambientais envolvem um conjunto limitado de radionuclídeos comuns. Há uma grande quantidade de mérito na realização de medições em relação a um padrão de referência para cada radionuclídeo em vez de depender da interpolação de uma curva de calibração. Essa interpolação inevitavelmente introduz incertezas extras além dos envolvidos na produção de um ponto na curva. Na verdade, devido a um ou

mais dos fatores listados acima, a curva de calibração pode não ser precisa em muitos casos (GILMORE, 1995).

Na prática, é claro, se houve restrições quanto ao uso de ferramentas experimentais o uso das curvas de eficiência pode ser a opção mais viável para o metrologista. Se o programa de análise de espectro não fornecer outra opção que não requeira o uso de uma curva de calibração, então uma curva deve ser criada. No entanto, vale a pena ter em mente o potencial de erro no uso de curvas de calibração. Há de se salientar, entretanto, que mesmo com o potencial de erros que irão interferir diretamente na precisão das medições, as curvas de eficiência são ferramentas poderosas que transmitem ao operador, informações diretas sobre o sistema de detecção. Dispondo o operador de fontes padronizadas por um sistema ou método primário, podem-se descobrir efeitos de flutuação ou até mesmo anomalias na eletrônica do sistema, podendo servir como indicativo de ações corretivas a fim de normalizar as condições de operação do sistema (GILMORE, 2013).

### **3.6 Interação da Radiação com o material do detector**

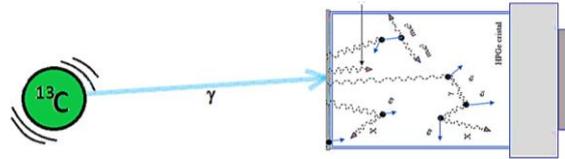
Quando se deseja fazer uma medição de uma grandeza, é necessário considerar a relação que se estabelece entre o mensurando e o instrumento de medição. Realizar medidas de grandezas nucleares não é tão simples quanto medir o comprimento de uma barra com um paquímetro. Primeiramente, o que devemos ter em mente é que o que se mede essencialmente da decorrência da interação da radiação com o volume sensível de um detector (e efeitos secundários, é claro) são os efeitos que surgirão a partir do evento primário. Esses efeitos serão transmutados em cargas elétricas que serão coletadas pelo pré-amplificador<sup>5</sup> do sistema que o converterá em um pulso de proporcionalidade tal qual o efeito primário ou secundário que o originou.

Podemos separar em dois grupos as partículas que causam estes efeitos: partículas carregadas ( $\alpha$ ,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ ) e as “não carregadas” que são essencialmente ondas eletromagnéticas (gama e fótons). O primeiro grupo irá interagir de forma direta com o detector excitando-o por ionização do material, cujas cargas geradas no processo serão captadas imediatamente pelo pré-amplificador. Já as radiações gama e os fótons que não tem carga elétrica não irão interagir deste modo (GILMORE, 1995). A detecção da

---

<sup>5</sup> Unidade responsável por coletar e pré-amplificar o sinal que sai do detector.

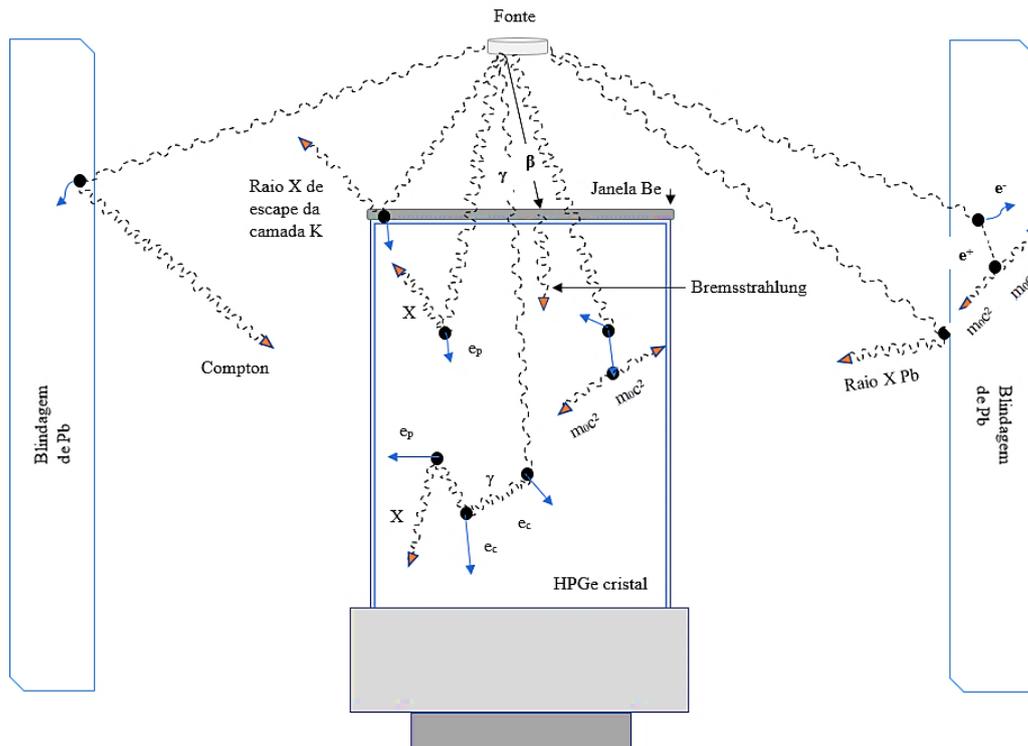
radiação gama, por exemplo, irá depender de outros tipos de interação ocorrendo a transferência da energia desse gama para os elétrons presentes no material.



**Figura 3. 4: Um nuclídeo emissor gama cuja radiação emitida interage com o volume sensível do detector**

### 3.6.1 Mecanismos e tipos de interação

Não se pode estipular um limite para a interação da radiação gama com a matéria, pois isto depende exclusivamente da energia da radiação incidente. Embora esta não possa ser estimada, existem efeitos que podem ocorrer dependendo da faixa energética como mostra a figura 3.5 e que serão descritos brevemente a seguir. Estamos interessados apenas em revelar os tipos de interações que serão de essencial conhecimento para as medições que serão apresentadas nos capítulos posteriores. A critério de complementação, uma vasta literatura especializada e que descreve minuciosamente estes e outros efeitos pode ser consultada em (GILMORE, 1995, KNOL, 1989, DEBERTIN, 1988, L'ANNUZIATA, 1998, TAUHATA, 2015).



**Figura 3. 5: Interação da radiação com o material do detector de HPGe e efeitos secundários**

- **Absorção Fotoelétrica** – Este tipo de interação considera a transferência da energia do raio gama incidente para um elétron do átomo e ocorre principalmente na camada K, onde o átomo fica em momentâneo estado excitado e uma vacância é gerada nesta camada. Um elétron da camada mais externa preenche esta vacância e emite um fóton de raio X característico (GILMORE, 1995). Este último fenômeno é conhecido como **Fluorescência de Raios X** e é visto comumente no espectro numa faixa de 10 a 12 keV para um detector de HPGe. Há de se salientar que podem ocorrer eventos na fronteira da superfície do detector, o que resulta na emissão de raios X de fluorescência decorrentes do escape da camada K (KNOLL, 1989). Este processo é conhecido como **raios X de escape** e no caso do detector citado na figura 3.5 pode ser denominado como **pico de escape do Germânio**.

- **Espalhamento Compton** – Este tipo de fenômeno considera a interação direta da radiação gama com o elétron onde ocorre a transferência de parte da sua energia. Após a colisão, o raio gama incidente é defletido de um ângulo  $\theta$  em relação ao eixo de incidência e sai da trajetória inicial com energia menor. A outra parte da energia é transferida para o elétron de recuo. Se o ângulo de deflexão  $\theta$  for igual a  $180^\circ$  a

radiação gama incidente é refletida na mesma direção, porém em sentido contrário ao de incidência. Esse efeito é conhecido como **backscattering** e ocorre tanto para os efeitos secundários quanto da interação do gama incidente com a blindagem de chumbo que retorna ao detector (GILMORE, 1995). Este fenômeno costuma ocorrer na faixa de 200 keV no detector de HPGe e é um evento que só ocorrerá na presença de uma fonte radioativa dentro da blindagem que contém o detector.

- **Produção de Pares** – Diferentemente do efeito Compton e absorção fotoelétrica, a radiação gama irá interagir com o átomo como um todo. O processo de interação conhecido por produção de pares ocorre para um fóton de raios X incidente que se aproxima do núcleo atômico e fica sob influência da força do campo nuclear. Nesta condição, o fóton incidente desaparece, originando duas partículas carregadas: o pósitron e o elétron (GILMORE, 1995). O primeiro se combina com um elétron livre do meio, gerando dois fótons de 0,511 MeV (radiação de aniquilação); Já o elétron perde sua energia por meio de excitação ou ionização. Naturalmente, para que a conservação do momento seja obedecida, este gama incidente deve ter uma energia maior do que 1022 keV. Para os casos aqui analisados este efeito não tem predominância, e o mesmo só irá ocorrer para radioisótopos muito específicos tais como  $^{88}\text{Y}$ .

- **Bremsstrahlung** – É um efeito que ocorre predominantemente da interação de elétrons emitidos por uma fonte (emissores  $\beta^-$ ) e o campo Coulombiano do núcleo (KNOLL, 1989). Como não foram utilizados radioisótopos desta natureza este efeito não foi analisado.

- **Efeito Auger** – Os elétrons Auger são resultantes de uma amostra radiativa que emita muitos raios X característicos. Alguns destes raios X colidem com os elétrons da própria fonte e os ejeta por efeito fotoelétrico (GILMORE, 1995). Estes elétrons permitem observar a ocorrência da captura eletrônica e geralmente ficam retidos no próprio invólucro que contém a solução radioativa (Estes estão na faixa de 50 keV ou menos e raramente causam efeitos perceptíveis no espectro obtido). Deste modo, analisando as características dos detectores de NaI e Ge percebemos que estes não possuem aplicação na medição de elétrons uma vez que os detectores utilizados não detectam partículas.

Todos os efeitos listados acima aparecem no espectro real obtido para uma fonte e cada qual apresentará suas singularidades visto que, alguns efeitos ocorrerão predominantemente para energias maiores ou menores, dependendo do caso. As figuras

3.6 e 3.7 mostram alguns destes efeitos identificados na reprodução de um espectro idealizado, mas compatível com um real:

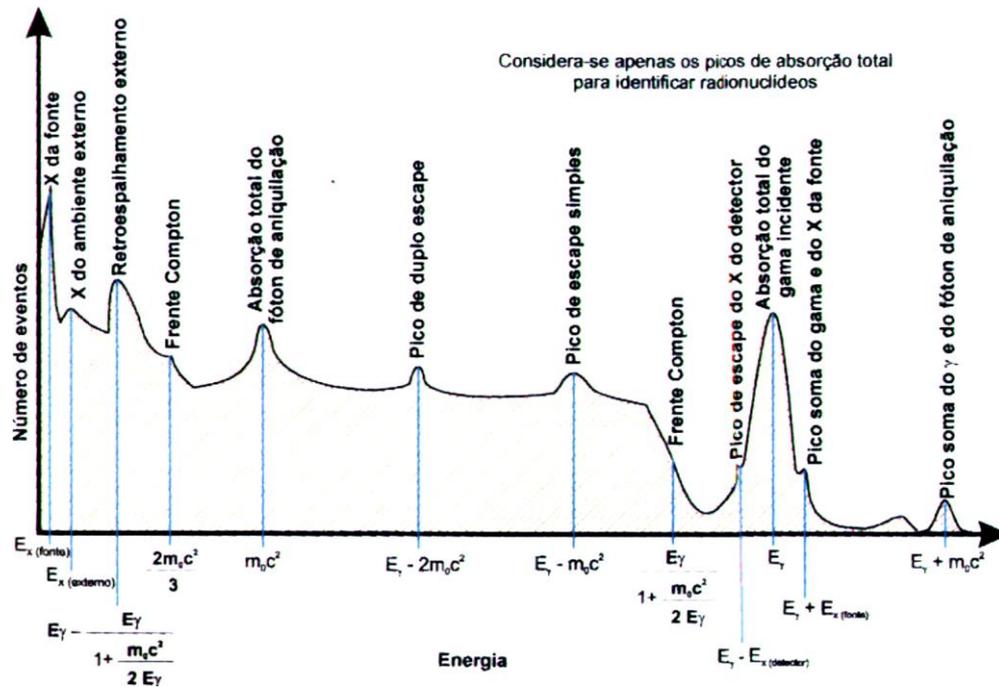


Figura 3. 6: Identificação dos efeitos da interação da radiação com a matéria num espectro idealizado

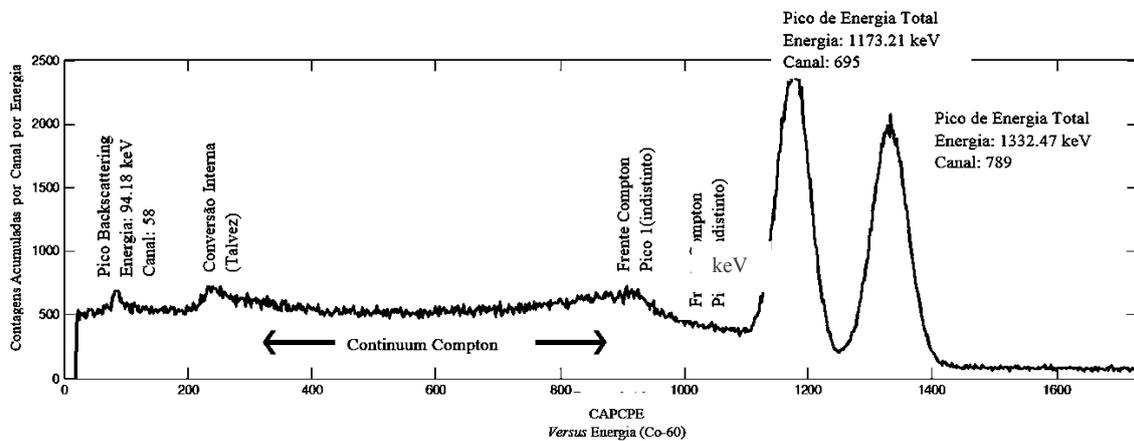


Figura 3. 7: Identificação dos efeitos da interação da radiação com a matéria num espectro real de Co-60

### 3.7 Efeitos de Correlação Angular

Todos os efeitos secundários que decorrem do processo de interação da radiação com o detector precisam ser levados em conta e alguns fatores de correção podem ser utilizados para corrigir esses efeitos. É possível encontrar uma vasta literatura

(SCHIMA, F. J., 1983, DEBERTIN, K., 1979, MOREL, J., 1983) que apresenta a dedução de fatores de correção e valores tabelados para muitos radionuclídeos de interesse metrológico.

Correlações angulares entre raios gama são bastante conhecidos. Fraunfelder e Steffen apontam que “a probabilidade de emissão de um quantum pelo núcleo radioativo depende do ângulo entre o eixo de rotação nuclear (spin) e a direção de emissão”. De uma maneira geral, o efeito de correlação angular mais importante ocorre levando-se em conta o ângulo sólido das medições conforme a figura 3.8. Por outro lado, os efeitos soma de coincidência podem ocorrer em direção diametralmente oposta, o que pode causar diferenças significantes quando se considera o posicionamento das fontes muito próximas ao detector.



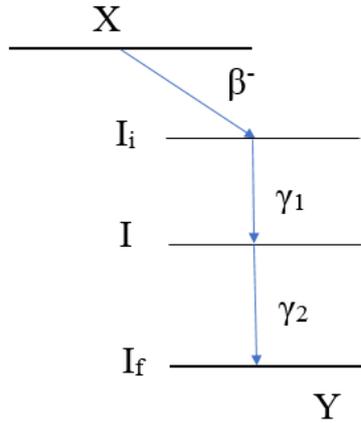
**Figura 3. 8: Efeitos de correlação angular entre os gamas**

A influência das correlações angulares direcionais considerando os efeitos soma coincidentes ainda não foram estudadas em detalhes. Porém, considerando-se os poucos trabalhos existentes que abordam o assunto (GEHRKE, R. J. 1977, ROTETA, M., 1996) e baseando-se em suas conclusões, os efeitos de correlação angulares são usualmente negligenciados.

Neste trabalho foram considerados os efeitos de correlação angular para um radionuclídeo que foi calibrado pelo método Pico-soma:  $^{60}\text{Co}$ .

O efeito de correlações angulares em nuclídeos que se desexcitam via emissão de duas ou mais radiações gama em cascata não pode ser evidenciado a menos que o experimentador selecione um eixo de referência para a medição de uma radiação gama, e em seguida, meça outros raios gama pertencentes à mesma cascata.

Considere o caso onde um radionuclídeo que decaia via emissão de duas radiações gama em cascata de um nível inicial com *spin*  $I_i$  para um nível final com *spin*  $I_f$  através do nível intermediário  $I$ , de acordo com a figura 3.9.



**Figura 3. 9: Esquema representativo de um radionuclídeo que decaia via emissão de duas radiações  $\gamma$  subsequentes**

Para efeito de simplicidade, supõe-se que ambas as radiações gama são independentes com ordens multipolares  $L_1$  e  $L_2$ . A correlação direcional entre as radiações pode ser dada pela expressão 3.1:

$$W(R_1, R_2) = W(\theta) = \sum_{K_{\min}}^{K_{\max}} A_{KK} P_K(\cos \theta) \quad (3.1)$$

Onde  $R_1$  e  $R_2$  são as direções primárias e secundárias entre os raios gama, e  $\theta$  é o ângulo entre  $R_1$  e  $R_2$ ,  $P_K$  é o polinômio de Legendre com  $K_{\max} = \min[2I, 2L_1, 2L_2]$ . Os coeficientes  $A_{KK}$  são dados pela seguinte expressão:

$$A_{KK} = A_K(L_1, L_1, I_i, I) A_K(L_2, L_2, I_f, I) \quad (3.2)$$

Quando fatoramos  $A_{KK}$  obtemos dois termos  $A_K$  que dependem única e exclusivamente das características de cada emissão  $\gamma$  independentes.

Toda a parte experimental que será abordada no capítulo seguinte trata as medições de atividade para radionuclídeos que essencialmente decaem via emissão gama (em dupla ou tripla cascata) e por captura eletrônica. Porém, uma discussão interessante sobre os efeitos de correlação angular para os casos que envolvem captura eletrônica e conversão interna é feita com bastante embasamento físico teórico-

experimental nos primeiros capítulos da riquíssima obra do prêmio Nobel Kai Sieghban<sup>6</sup>, escrito por Fraunfelder e Steffen.

Não cabe aqui, portanto entrar em grandes detalhes visto que a obra acima citada por si só reúne todas as considerações às quais nos referimos exaustivamente. Vale apenas ressaltar que estes efeitos associados como, por exemplo, o Auger<sup>7</sup> que é manifestado devido a necessidade de emissão da energia excedente proveniente do processo do decaimento em cascata e eventos na camada K podem causar certas perturbações que podem ser percebidas no cálculo de correlações angulares.

Mesmo considerando que as referências consultadas indicam a possibilidade de negligenciar os efeitos de correlação, preferiu-se considerar tais efeitos para o <sup>60</sup>Co a fim de atribuir uma credibilidade maior ao aperfeiçoamento do método pico-soma. Outro fator que justifica a abordagem dos efeitos das correlações decorre da experimentação vivida do diálogo com os *referees* que questionam muitas das vezes se este tipo de correção foi levado em conta ao apresentar os resultados em publicações.

---

<sup>6</sup> Alpha-, Beta-, and Gamma-Ray Spectroscopy, ed. K. Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1965).

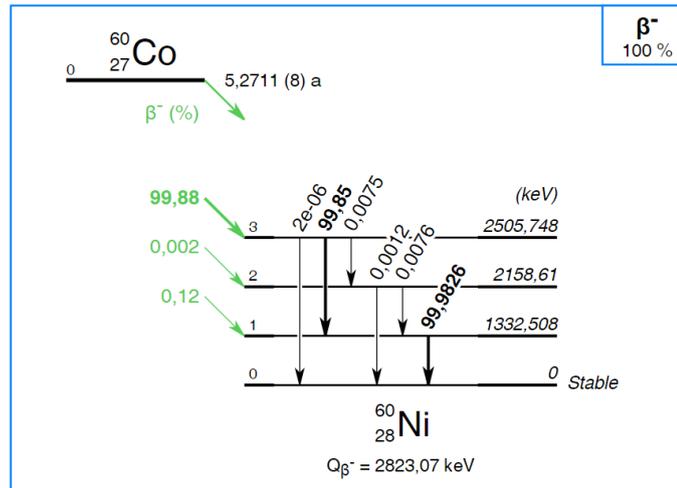
<sup>7</sup> Naturalmente a emissão de radiação X também ocorre no decorrer do processo

## Capítulo 4

### TEORIA

#### 4.1 Teoria para duas radiações

Considere um radionuclídeo que emita duas radiações gama em coincidência, tal qual mostra o exemplo do  $^{60}\text{Co}$  (NUCLÉIDE-LARA, 2018).



**Figura 4. 1: Esquema de decaimento do  $^{60}\text{Co}$**

Sejam  $A_1$  e  $A_2$  as áreas dadas pelos picos de energia total:

$$A_1 = N\varepsilon_1 P_{\gamma_1} (1 - P_{\gamma_2} t_2) \quad (4.1)$$

$$A_2 = N\varepsilon_2 P_{\gamma_2} (1 - P_{\gamma_1} t_1) \quad (4.2)$$

Em que  $N$  é a atividade absoluta;  $\varepsilon_1$  e  $\varepsilon_2$  são as eficiências dos picos de energia total;  $t_1$  e  $t_2$  são as eficiências totais (pico de energia total + Compton + formação de pares, etc.);  $P_{\gamma_1}$  e  $P_{\gamma_2}$  são as probabilidades de emissão do isótopo. Os termos entre parêntesis devem ser interpretados utilizando a teoria das probabilidades, onde podemos convencionar  $P_{\gamma} = 1$  para o evento “detecção da radiação”;  $(1 - P_{\gamma_1} t_1)$  a probabilidade de não detectar  $\gamma_1$  e  $(1 - P_{\gamma_2} t_2)$  como sendo a probabilidade de não detectar  $\gamma_2$ .

Logicamente, o produto de todos os termos das equações (4.1) e (4.2) partem do princípio que a radiação foi detectada pelo sistema e não estamos mais no domínio dos

eventos do núcleo visto que os eventos decorrentes das transições entre os estados já ocorreram. Basta apenas que se considere a probabilidade de emissão para aquela determinada energia gama e os eventos independentes que ocorrem no processo de detecção. Aqui consideramos  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  como sendo eventos mutuamente independentes que quando combinados, resultarão no efeito soma.

Seja a área do pico-soma  $A_{12}$  representada por:

$$A_{12} = N \varepsilon_1 P_{\gamma_1} \varepsilon_2 P_{\gamma_2} \quad (4.3)$$

Combinando as equações dadas por (4.1), (4.2) e (4.3) obtemos que:

$$A_{12} = N \varepsilon_1 P_{\gamma_1} \varepsilon_2 P_{\gamma_2} \quad (4.4)$$

E

$$R = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} = N (1 - P_{\gamma_1} t_1) (1 - P_{\gamma_2} t_2) \quad (4.5)$$

A área total do espectro é dada por T:

$$T = N(P_{\gamma_1} t_1 + P_{\gamma_2} t_2 - P_{\gamma_1} t_1 P_{\gamma_2} t_2) \quad (4.6)$$

$$T = N[1 - (1 - P_{\gamma_1} t_1)(1 - P_{\gamma_2} t_2)]$$

$$T = N - N(1 - P_{\gamma_1} t_1)(1 - P_{\gamma_2} t_2)$$

$$T = N - R \quad \therefore N = T + R \quad (4.7)$$

$$N = T + \frac{A_1 A_2}{A_{12}} \quad (4.8)$$

$$N = T + R \quad (4.9)$$

O conjunto de equações apresentado anteriormente possui quatro equações e as incógnitas:  $N$ ,  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$ ,  $t_1$  e  $t_2$ . Como temos cinco incógnitas e quatro equações é

necessário desenvolver uma nova equação a fim de calcular as eficiências de maneira teórica e isto será feito no próximo subitem.

Como pode ser observado, a equação (4.8) é idêntica ao modelo apresentado por Brinkman et al. em 1963. A coerência da equação é mantida uma vez que os termos adicionais se cancelam e a restrição feita pelo autor em seus trabalhos é irrelevante. O que esta abordagem propõe é que se estabeleça um tratamento estatístico onde se considere a probabilidade de emissão em vez da eficiência de detecção proposta pelo autor na concepção original do método. Esta primeira parte da dedução comprova que não há a necessidade de haver qualquer restrição relacionada à ocorrência de pelo menos um dos gamas com 100% como, é exigido em seus cinco trabalhos originalmente publicados.

Os valores de  $P_\gamma$  foram medidos por diversos pesquisadores mundialmente, cujos valores mais exatos encontram-se elencados em tabelas e podem ser obtidos em *sites* dos principais laboratórios mundiais, porém, em critério de estabelecimento da hierarquia metrológica, optou-se por utilizar os valores apresentados pelo *Laboratoire National Henri Becquerel* (LNHB) disponíveis na plataforma LARA/web.

#### 4.2 Teoria para três radiações (soma tripla)

Agora vamos supor um radionuclídeo que decaia via emissão de três radiações gama consecutivas. Aplicando novamente o raciocínio em que as eficiências sejam substituídas por uma relação de probabilidades de emissão, teremos o seguinte conjunto de equações:

$$A_1 = N\varepsilon_1 P_{\gamma_1} (1 - P_{\gamma_2} t_2)(1 - P_{\gamma_3} t_3) * \quad (4.10)$$

$$A_2 = N\varepsilon_2 P_{\gamma_2} (1 - P_{\gamma_1} t_1)(1 - P_{\gamma_3} t_3) \quad (4.11)$$

$$A_3 = N\varepsilon_3 P_{\gamma_3} (1 - P_{\gamma_1} t_1)(1 - P_{\gamma_2} t_2) \quad (4.12)$$

As equações (4.10), (4.11) e (4.12) relacionam o número total de contagens  $N$ , onde  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$  e  $\varepsilon_3$  são as eficiências de detecção,  $P_\gamma$  é a respectiva probabilidade de emissão para cada energia e os termos  $t_1$ ,  $t_2$  e  $t_3$  são as probabilidades de detectar as radiações gamas. Com elas é possível calcular o valor da área delimitada por todos os gamas envolvidos na relação entre as somas.

A área dos picos-soma provenientes dos gamas consecutivos é dada por:

$$A_{12} = N\varepsilon_1 P_{\gamma_1} \varepsilon_2 P_{\gamma_2} (1 - P_{\gamma_3} t_3) * \quad (4.13)$$

$$A_{13} = N\varepsilon_1 P_{\gamma_1} \varepsilon_3 P_{\gamma_3} (1 - P_{\gamma_2} t_2) \quad (4.14)$$

$$A_{23} = N\varepsilon_2 P_{\gamma_2} \varepsilon_3 P_{\gamma_3} (1 - P_{\gamma_1} t_1) \quad (4.15)$$

Novamente, a área relacionada pelas respectivas somas é descrita conforme as equações acima que congregam os termos que já foram descritos anteriormente.

A área relacionada pelas somas triplas pode ser dada por:

$$A_{123} = N\varepsilon_1 P_{\gamma_1} \varepsilon_2 P_{\gamma_2} \varepsilon_3 P_{\gamma_3} * \quad (4.16)$$

Combinando as equações anteriores obtemos, facilmente que:

$$R = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} = \frac{A_1 A_3}{A_{13}} = \frac{A_2 A_3}{A_{23}} = \frac{A_{12} A_{13} A_{23}}{(A_{123})^2} \quad (4.17)$$

$$R = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} = \frac{A_1 A_3}{A_{13}} = \frac{A_2 A_3}{A_{23}} = \frac{A_{12} A_{13} A_{23}}{(A_{123})^2} \quad (4.18)$$

$$R = N(1 - t_1 P_{\gamma_1})(1 - t_2 P_{\gamma_2})(1 - t_3 P_{\gamma_3}) * \quad (4.19)$$

Colocando o termo  $N$  em evidência, temos que:

$$T = N[1 - (1 - t_1 P_{\gamma_1})(1 - t_2 P_{\gamma_2})(1 - t_3 P_{\gamma_3})] \quad (4.20)$$

Onde finalmente se obtém a 4.9:

$$N^8 = T + R$$

---

<sup>8</sup> As equações marcadas pelo asterisco indicam formas de obter o valor de  $N$  de quatro maneiras diferentes. A escolha do valor de  $N$  deve ser feita de forma a selecionar o valor que apresente a menor incerteza desde que a linha de energia apareça no espectro sem interferências.

Aqui também podemos perceber que não há qualquer restrição que imponha um valor de 100% para a probabilidade de qualquer um dos gamas envolvidos. Aqui teremos como incógnitas:  $N$ ,  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$ ,  $\varepsilon_3$ ,  $t_1$ ,  $t_2$  e  $t_3$  (sete no total) e oito equações com as quais é possível extrair o valor das eficiências de forma direta.

### 4.3 Determinação das Eficiências

Como foi visto e deduzido para duas radiações gama em coincidência, temos quatro equações e cinco incógnitas para achar o valor das eficiências  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$ , e as probabilidades  $t_1$ ,  $t_2$ . Lançamos mão de uma medida externa onde a fonte é colocada a certa distância do detector. Segundo Brinkman *et al.* em seu trabalho nº II a distância estabelecida foi de 6,8 cm, enquanto que para o caso aqui estabelecido o ideal é estabelecer uma distância em torno de 20 cm. Estabelecendo essa geometria distância fonte-detector, as somas das radiações passam a não se manifestar (ainda que existam, mas não aparecem no espectro), visto que é um efeito que vai depender de forma direta do controle desses dois parâmetros: atividade da fonte e distância fonte-detector.

Seguindo essa linha de raciocínio, podemos escrever que:

$$A'_1 = N\varepsilon'_1 P'_{\gamma_1} \quad (4.21)$$

$$A'_2 = N\varepsilon'_2 P'_{\gamma_2} \quad (4.22)$$

$$A_1^t = Nt'_1 P_{\gamma_1} \quad (4.23)$$

$$A_2^t = Nt'_2 P_{\gamma_2} \quad (4.24)$$

$$T = N[1 - (1 - t'_1 P_{\gamma_1})(1 - t'_2 P_{\gamma_2})] \quad (4.25)$$

Dividindo (4.23) por (4.21), temos:

$$\frac{A'_1}{A_1^t} = \frac{t'_1}{\varepsilon'_1} = h_1(E_1) \quad (4.26)$$

Em que  $h_1(E_1)$  é um parâmetro livre que vale para qualquer posição estabelecida entre a fonte e o detector (MALONDA, A. G., 1995).

Dividindo (4.22) por (4.24), temos que:

$$\frac{A'_2}{A_2^t} = \frac{\varepsilon'_2}{t'_2} = h_2(E_2) \quad (4.27)$$

E dividindo (4.12) por (4.13), temos que:

$$\frac{A'_1}{A'_2} = \frac{\varepsilon'_1}{\varepsilon'_2} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \quad (4.28)$$

Retornando às equações iniciais, usando a equação (4.3) do item 4.1, e a partir da equação (4.28), ficaremos com:

$$\varepsilon_1 = \frac{A'_1}{A'_2} \varepsilon_2 \quad (4.29)$$

Que substituída em (4.3), resulta:

$$A_{12} = N \frac{A'_1}{A'_2} \varepsilon_2 P_{\gamma 1} \varepsilon_2 P_{\gamma 2} \therefore A_{12} = \varepsilon_2^2 \left[ \frac{N A'_1 P_{\gamma 1} P_{\gamma 2}}{A'_2} \right] \therefore \varepsilon_2^2 = \frac{A_{12} A'_2}{N A'_1 P_{\gamma 1} P_{\gamma 2}} \quad (4.30)$$

O mesmo caminho permite calcular  $e_1$  e em sequência  $t_1$  e  $t_2$  sem restrições ou aproximações. Aproveitando este desenvolvimento, é possível obter as curvas de  $\varepsilon \times E$  e de  $t \times E$  tanto internas quanto externas.

A obtenção da curva  $t \times E$  para um detector tipo poço de HPGe interna permite a aplicação do método  $4\pi\gamma$  neste tipo de detector. Isto está fora do interesse desta pesquisa e será abordada em outro momento.

Hipoteticamente, a partir de um radioisótopo que emita três radiações gama consecutivas teremos sete equações e sete incógnitas, eliminando assim a necessidade do uso de uma medida externa.

Se houver ainda um radionuclídeo que decaia a partir da emissão de quatro radiações gama consecutivas, teremos:

- Quatro equações envolvendo os picos de energia total

- Seis equações envolvendo as coincidências duplas
- Quatro equações envolvendo as coincidências triplas
- Uma equação envolvendo a coincidência quádrupla
- Uma equação para o espectro total

Teremos então 16 equações e nove incógnitas com  $P_{\gamma}$  conhecidos.

#### 4.4 Estimativa de Incertezas

No ANEXO C deste manuscrito são abordados alguns aspectos a respeito da metrologia e algumas condições de validade que sustentam a ciência da medição. Portanto, o assunto que será abordado neste tópico é um dos mais importantes e mais delicados num trabalho científico cuja finalidade seja mostrar credibilidade e qualidade quanto aos resultados apresentados. Falar em metrologia e qualquer etapa de medição significa sobretudo estimar as incertezas às etapas associadas, pois **é impossível sob qualquer circunstância de domínio das variáveis de interferência, estimar o valor verdadeiro de uma grandeza de forma absoluta** (SANTANA, 2012).

Quando se realiza um procedimento de medição, a ele inerentemente estarão associadas variações que englobam condições de interferentes ou ruídos de medição, da perícia do operador, dentre outras que inviabilizam conhecer e estimar o valor exato de uma grandeza. Entretanto, dada essa condição intransponível, a Metrologia procura estabelecer técnicas que nos permitam obter valores com exatidão confiável e que possibilite ao pesquisador conviver de maneira harmoniosa com as limitações que interferem em uma medição (SANTANA, 2012).

Em se tratando de um procedimento de **calibração**, é de suma importância apresentar além do valor nominal da grandeza medida, um memorial onde estejam descritas e discriminadas todos os componentes de incerteza que compuseram o procedimento de calibração. Seguindo a declaração do VIM temos a definição do termo incerteza:

***“Incerteza de Medição***

*Parâmetro não negativo que caracteriza a dispersão dos valores atribuídos a um mensurando, com base nas informações utilizadas”*

Por definição a incerteza será um parâmetro que caracteriza a dispersão de valores, sendo a representação dos erros aleatórios<sup>9</sup>. Uma vez que os erros aleatórios são imprevisíveis, a incerteza de medição se apropria de estimativas que juntas compõem uma previsão, estatisticamente embasada do erro aleatório. No resultado de uma medição, a incerteza será uma faixa simétrica dos valores em torno do valor central, na qual a medição se encontra, com uma dada probabilidade. Segundo o ISO GUM que recomenda e orienta a expressão da estimativa de incertezas de medição, essa probabilidade deve ser de 95,45%<sup>10</sup> (SANTANA, 2012).

Após o mapeamento cuidadoso e classificação das fontes de incerteza, deve-se quantificar essas incertezas para que estas possam ser combinadas, compondo assim a incerteza expandida. Podemos classificar as incertezas em dois únicos grupos sendo:

- **Incerteza do tipo A** – Dados obtidos a partir de medições e estatística descritiva de medições realizadas.
- **Incerteza do tipo B** – Dados obtidos por estimativa, inferência ou conhecimento prévio sobre a fonte de incerteza (certificados e manuais).

Portanto, qualquer medição ou calibração será influenciada obrigatoriamente por incertezas associadas à repetitividade, resolução ou padrão/instrumento.

A propagação de incertezas no método pico-soma pode ser feita utilizando o método das incertezas relativas. Este método utiliza um artifício bastante simples para contornar o fato de termos incertezas parciais de diferentes grandezas e com diferentes unidades envolvidas. Sendo assim, será possível combinar as incertezas relativas, ou seja, o percentual que cada incerteza representa do seu respectivo valor. Assim, todas as grandezas, independentemente da unidade de entrada, estarão medidas em percentual (SANTANA, 2012).

Esta forma de abordagem e tratamento de incertezas possibilita resultados bastante próximos daqueles obtidos quando aplicamos o método das derivadas parciais. Quanto mais simples for a equação que relaciona as grandezas de interesse, melhor será o resultado obtido pelo método da incerteza relativa. Nos casos em que são envolvidas

---

<sup>9</sup> Erro aleatório: Componente do erro de medição que varia de maneira imprevisível a cada medição.

<sup>10</sup> Proveniente da distribuição T-student que permite uma estimativa genuína a partir de uma amostra pequena de dados para obter uma estimativa para a confiabilidade desejada. Expressa-se comumente como “ (valor medido  $\pm$  incerteza expandida) acompanhado da respectiva grandeza com fator de abrangência para  $k = 2$  e nível de confiança de 95,45%

as operações de soma, multiplicação e divisão os resultados, geralmente, costumam ser os mesmos.

#### 4.4.1 Propagação de Incertezas para o método pico-soma para duas radiações coincidentes

Para o método pico-soma, os componentes estatísticos são obtidos através da equação 4.9:

$$N = T + R$$

Esta equação em específico, não faz uso de parâmetros nucleares tabelados e, portanto, terá apenas componentes de incerteza do tipo A provenientes das contagens dos picos de energia total fornecidos pelo *software* de aquisição de dados MAESTRO® e que serão explicitados de maneira técnica no capítulo 5 deste manuscrito.

Ainda dentro do grupo de incertezas do tipo A, iremos considerar o componente de incerteza devido a extrapolação para o nível zero de energia (0 keV), que é um procedimento onde se desconta a contribuição de contagens provenientes do início da janela do multicanal (que é uma região instável). Isto é feito com o intuito de garantir uma região de limiar de detecção constante e sem interferências do “gap” inicial do espectro. É um procedimento comum e já implementado na rotina do laboratório de espectrometria que realiza análises deste tipo.

Outra consideração importante para incertezas tipo A no método pico-soma decorre do controle das contagens de radiação de fundo ou *background*<sup>11</sup> que precisam ser monitoradas e descontadas do número total de contagens. Aqui também serão descontadas as interferências dos efeitos Compton encontrados no espectro.

As incertezas estatísticas obtidas para uma equação que relaciona diferentes tipos de grandezas devem ser obtidas conforme a metodologia oficial estabelecida no ISO GUM, pelo método das derivadas parciais. Aplicando ao método pico-soma temos que:

$$u_c^2(N) = \left(\frac{\partial N}{\partial T}\right)^2 u_T^2 + \left(\frac{\partial N}{\partial A_1}\right)^2 u_{A_1}^2 + \left(\frac{\partial N}{\partial A_2}\right)^2 u_{A_2}^2 + \left(\frac{\partial N}{\partial A_{12}}\right)^2 u_{A_{12}}^2 \quad (4.31)$$

---

<sup>11</sup> Background ou BG é a quantificação da radiação de fundo da região geográfica onde se está fazendo a calibração ou medição. Cada região apresenta um BG diferente que pode variar consideravelmente de um laboratório para o outro.

Os fatores de sensibilidade serão:

$$\left(\frac{\partial N}{\partial T}\right) = 1$$

$$\left(\frac{\partial N}{\partial A_1}\right) = \frac{A_2}{A_{12}}$$

$$\left(\frac{\partial N}{\partial A_2}\right) = \frac{A_1}{A_{12}}$$

$$\left(\frac{\partial N}{\partial A_{12}}\right) = -\frac{A_1 A_2}{A_{12}^2}$$

Substituindo, tem-se:

$$u_c^2(N) = u_T^2 + \left(\frac{A_2}{A_{12}}\right)^2 u_{A_1}^2 + \left(\frac{A_1}{A_{12}}\right)^2 u_{A_2}^2 + \left(-\frac{A_1 A_2}{A_{12}^2}\right)^2 u_{A_{12}}^2 \quad (4.32)$$

Utilizando a distribuição de Poisson, tem-se:

$$u_T = \sqrt{T}$$

$$u_{A_1} = \sqrt{A_1}$$

$$u_{A_2} = \sqrt{A_2}$$

$$u_{A_{12}} = \sqrt{A_{12}}$$

Em que,  $A_1$ ,  $A_2$ , e  $A_{12}$  são as áreas dos fotopicos das radiações  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  e coincidência  $\gamma_{12}$ . Assim, a incerteza combinada da atividade N será:

$$u_c(N) = \sqrt{T + \left(\frac{A_2}{A_{12}}\right)^2 A_1 + \left(\frac{A_1}{A_{12}}\right)^2 A_2 + \left(\frac{A_1 A_2}{A_{12}^2}\right)^2 N_{A_{12}}} \quad (4.33)$$

O valor de  $T$  representa a contagem total do espectro que será apresentada no tópico Materiais e Métodos com os intervalos de energia estabelecidos para cada sistema e maior riqueza de detalhes sobre os sistemas de detecção utilizados. De maneira geral, o valor de  $A$  é obtido pelo comando “SUM” que fornece o número de contagens total após o abatimento do *background*.

Logo, a incerteza expandida será:

$$U(N) = k u_c(N) \quad (4.34)$$

\*\*\*

Partindo da expressão,

$$N = T + R = T + \frac{A_1 A_3}{A_{13}} \quad (4.35)$$

Tem-se,

$$u_c(N) = \sqrt{u^2(T) + u^2(R)} \quad (4.36)$$

A incerteza combinada de  $N$  proveniente das incertezas de  $T$ ,  $A_1$ ,  $A_3$  e  $A_{13}$ , será:

$$u_c(N) = \sqrt{u^2(T) + \left(\frac{\partial N}{\partial A_1}\right)^2 u_{A_1}^2 + \left(\frac{\partial N}{\partial A_3}\right)^2 u_{A_3}^2 + \left(\frac{\partial N}{\partial A_{13}}\right)^2 u_{A_{13}}^2} \quad (4.37)$$

Considerando:

$$u(T) = \sqrt{T}$$

$$\frac{\partial N}{\partial A_1} = \frac{A_3}{A_{13}}$$

$$\frac{\partial N}{\partial A_3} = \frac{A_1}{A_{13}}$$

$$\frac{\partial N}{\partial A_{13}} = -\frac{A_1 A_3}{A_{13}^2}$$

Substituindo, tem-se a incerteza combinada de  $N$ :

$$u_c(N) = \sqrt{T + \left(\frac{A_3}{A_{13}}\right)^2 A_1 + \left(\frac{A_1}{A_{13}}\right)^2 A_3 + \left(\frac{A_1 A_3}{A_{13}}\right)^2 A_{13}} \quad (4.38)$$

A incerteza expandida de  $N$  será:

$$U = k u_c(N) \quad (4.39)$$

Quando se faz a aquisição de dados via *software* MAESTRO, naturalmente se estabelece uma faixa de tempo para armazenar as contagens. Em se tratando de tempo de contagens do espectro comum de um determinado radionuclídeo que se deseja investigar, este tempo será diferente do tempo escolhido para contagem de *background* por exemplo. Enquanto se estabelece uma faixa de 6 a 12 horas para aquisição de dados de um radionuclídeo, a faixa de tempo de aquisição de dados do BG pode ser estabelecida em torno de 48 horas ou mais (de acordo com cada laboratório e necessidade do mesmo). Considerando essa diferença entre tempos de medição para um radionuclídeo e a coleta de *background*, pode-se estabelecer uma relação entre os tempos envolvidos.

Podem-se estabelecer algumas definições:

$t_R$  – Tempo vivo de contagem da amostra do radionuclídeo (de 6 a 12 h)

$t_{BG}$  – Tempo vivo de contagem do *background* (~ 48 h)

$sum_{RAD}$  – Soma das contagens do espectro do radionuclídeo obtido no tempo  $t_R$

$sum_{BG}$  – Soma das contagens do espectro do *background* obtido no tempo  $t_B$

$sum_{LIQ}$  – Soma das contagens líquidas das amostras com o radionuclídeo obtido no tempo  $t_R$

Assim, tem-se que:

$$sum_{LIQ} = sum_{RAD} - \left(\frac{t_R}{t_B}\right) sum_{BG} \quad (4.40)$$

A incerteza combinada de  $sum_{LIQ}$  será:

$$u_c^2(sum_{LIQ}) = u^2(sum_{RAD}) + \left(\frac{t_R}{t_B}\right)^2 u^2(sum_{BG}) \quad (4.41)$$

Ou seja,

$$u_c(sum_{LIQ}) = \sqrt{u^2(sum_{RAD}) + \left(\frac{t_R}{t_B}\right)^2 u^2(sum_{BG})} \quad (4.42)$$

Foram consideradas desprezíveis as incertezas em  $t_R$  e  $t_B$ . Utilizando a distribuição de Poisson, tem-se que:

$$u(sum_{RAD}) = \sqrt{sum_{RAD}} \quad (4.43)$$

$$u(sum_{RAD}) = \sqrt{sum_{RAD}} \quad (4.44)$$

Tem-se que:

$$u_c(sum_{LIQ}) = \sqrt{sum_{RAD} + \left(\frac{t_R}{t_B}\right)^2 sum_{BG}} \quad (4.45)$$

A incerteza combinada relativa do espectro líquido do radionuclídeo será:

$$\frac{u_c(sum_{LIQ})}{sum_{LIQ}} \times 100\% = u_c(\%) \quad (4.46)$$

A incerteza expandida relativa será obtida com:

$$U(\%) = k u_c(\%) \quad (4.47)$$

Se na expressão (4.34) for acrescentado o termo que acresça a extrapolação para o nível de energia 0 keV tem-se,

$$sum_{LIQ} = sum_{RAD} - \left(\frac{t_R}{t_B}\right) sum_{BG} + \xi_{0\ keV} \quad (4.48)$$

Temos  $u^2(\xi_{0\ keV}) = \xi_{0\ keV}$

$$u_C(\text{sum}_{LIQ}) = \sqrt{\text{sum}_{RAD} + \left(\frac{t_R}{t_B}\right)^2 \text{sum}_{BG} + \xi_{0 \text{ keV}}} \quad (4.49)$$

$$u_C(\%) = \frac{u_C(\text{sum}_{LIQ})}{\text{sum}_{LIQ} + \xi_{0 \text{ keV}}} \times 100\% \quad (4.50)$$

#### 4.4.2 Propagação de Incertezas do método pico-soma para três radiações coincidentes

Aqui, o procedimento é similar ao que foi desenvolvido para duas radiações. A mudança ocorre para o termo R que trará em seu desenvolvimento os termos diferentes. Vejamos, partindo da 4.6:

$$N = T + R$$

Onde,

$$R = \frac{A_{12}A_{13}A_{23}}{(A_{123})^2} \quad (4.51)$$

Tem-se que,

$$u_C(N) = \sqrt{u_T^2 + u_R^2} \quad (4.52)$$

Considerando-se,

$$u_R^2 = \left(\frac{\partial R}{\partial A_{12}}\right)^2 u_{A_{12}}^2 + \left(\frac{\partial R}{\partial A_{13}}\right)^2 u_{A_{13}}^2 + \left(\frac{\partial R}{\partial A_{23}}\right)^2 u_{A_{23}}^2 + \left(\frac{\partial R}{\partial A_{123}}\right)^2 u_{A_{123}}^2 \quad (4.52)$$

Tem-se,

$$\frac{\partial R}{\partial A_{12}} = \frac{A_{13}A_{23}}{(A_{123})^2}$$

$$\frac{\partial R}{\partial A_{13}} = \frac{A_{23}A_{12}}{(A_{123})^2}$$

$$\frac{\partial R}{\partial A_{23}} = \frac{A_{12}A_{13}}{(A_{123})^2}$$

$$\frac{\partial R}{\partial A_{123}} = (-2) \frac{A_{12}A_{13}A_{23}}{A_{123}^3}$$

Substituindo,

$$u_c(R) = \left[ \frac{A_{13}A_{23}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{12}}^2 + \left[ \frac{A_{12}A_{23}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{13}}^2 + \left[ \frac{A_{12}A_{13}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{23}}^2 + \left[ -2 \frac{A_{12}A_{13}A_{23}}{A_{123}^3} \right]^2 u_{A_{123}}^2 \quad (4.53)$$

Substituindo-se, tem-se a incerteza combinada de R,  $u_c(R)$

$$u_c(R) = \sqrt{\left[ \frac{A_{13}A_{23}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{12}}^2 + \left[ \frac{A_{12}A_{23}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{13}}^2 + \left[ \frac{A_{12}A_{13}}{(A_{123})^2} \right]^2 u_{A_{23}}^2 + \left[ -2 \frac{A_{12}A_{13}A_{23}}{A_{123}^3} \right]^2 u_{A_{123}}^2}$$

Então,

$$u_c(N) = \sqrt{T + \left( \frac{A_{13}A_{23}}{(A_{123})^2} \right)^2 A_{12} + \left( \frac{A_{12}A_{23}}{(A_{123})^2} \right)^2 A_{13} + \left( \frac{A_{12}A_{13}}{(A_{123})^2} \right)^2 A_{23} + \left( 2 \frac{A_{12}A_{13}A_{23}}{A_{123}^3} \right)^2 A_{123}}$$

A incerteza expandida será:

$$U = k u_c(N)$$

## **Capítulo 5**

### **MATERIAIS E MÉTODOS**

A proposta apresentada nesta tese engloba uma série de fatores técnicos que precisam ser levados em consideração quando se deseja fazer uma análise crítica do procedimento da obtenção da grandeza atividade. Nos capítulos anteriores juntamente com os anexos citados foi possível estabelecer o embasamento teórico necessário para que todo o desenvolvimento experimental pudesse ser feito com segurança e com ciência de que cada passo seguido na metodologia estabelecida tem seu embasamento baseado em teorias bem fundamentadas e que englobam todos os efeitos e interações decorrentes de um processo de medição.

Para medir a grandeza atividade, é necessário dispor de um sistema de espectrometria que possua características metrológicas tais como repetitividade e reprodutibilidade bem estabelecidos. Os sistemas de espectrometria do LNMRI possuem estabilidade garantida pelos resultados de sucesso em medições internas ao laboratório e externas quando da necessidade da participação em intercomparações promovidas pelo BIPM e outros laboratórios convidados. A padronização de radionuclídeos de decaimento simples e complexos utilizando este sistema em conjunto com o método de padronização absoluto pico-soma têm rendido publicações de grande destaque, como foi explicitado na introdução deste manuscrito.

Este capítulo fará primeiramente uma apresentação detalhada dos sistemas de espectrometria disponíveis no LNMRI e toda eletrônica associada. Será exposta toda a metodologia de confecção de curvas de eficiência que foram utilizadas para medições comparativas, bem como todo o procedimento de aplicação do método pico-soma para padronização dos radionuclídeos:  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{121}\text{Te}$ . Serão apresentadas as metodologias de tratamento de efeitos que necessitem de correção ou que devam ser considerados como fontes de incertezas.

As calibrações prévias dos sistemas de espectrometria gama seguirão rigorosamente os procedimentos da qualidade do LNMRI, específicos para detectores de germânio de alta pureza do laboratório de radionuclídeos.

#### **5.1 Sistemas de Espectrometria do LNMRI**

Os sistemas de espectrometria gama estão estrategicamente distribuídos no laboratório Ursa Maior do SEMRA em um número de três, compostos por três tipos de

detectores de HPGe com características intrínsecas diferentes: Um planar cuja identificação nominal no laboratório se faz por: “d4”; um coaxial com identificação nominal “d3” e um tipo poço ou “*well type*” com identificação nominal “d2”. Todos os três sistemas serão apresentados individualmente com detalhamento das características mais relevantes.

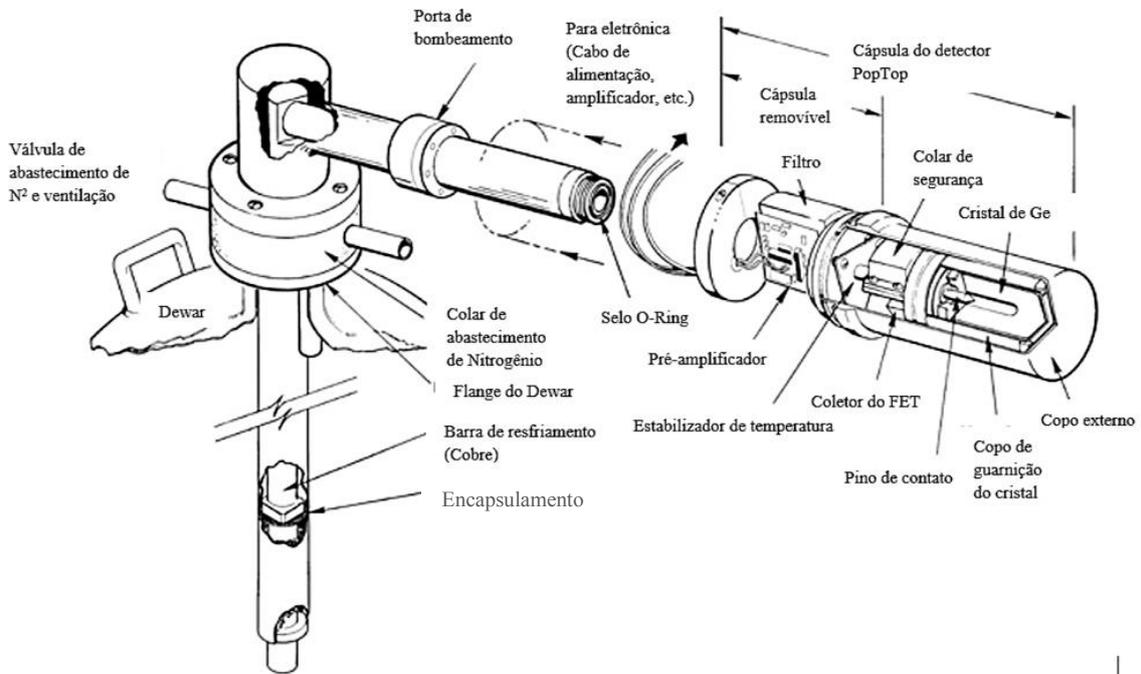
Os detectores de HPGe são estruturas que permitem medir com boa precisão as energias provenientes de um determinado radioisótopo. Possui um alto poder de resolução pois consegue discriminar com muita clareza picos de energia muito próximos, o que auxilia na medição das áreas de picos gerados por radioisótopos multi-gamas, como por exemplo no caso do  $^{133}\text{Ba}$  ou o  $^{152}\text{Eu}$ . Quanto à eficiência, ela deixa a desejar quando comparado a um detector do tipo NaI(Tl), o que, no entanto, não dificulta ou piora a qualidade das medições realizadas. Entretanto, para intuitos de medição que exija um poder de eficiência maior, este detector talvez não seja o mais recomendável (GILMORE, 1995).

Basicamente todos os três tipos de detectores citados possuem os mesmos componentes conforme, mostra a figura 5.1. As variações de cada modelo são apenas com relação a sua eficiência intrínseca de detecção e seu tamanho. O detector tipo poço apresentará uma cavidade de volume sensível no interior do detector e todos os três modelos estão dispostos na vertical em relação ao *Dewar*, que é o vaso de armazenamento de nitrogênio Líquido.

Este tipo de detector não se deteriora mediante um reaquecimento acidental, desde que não esteja sob tensão elétrica. Os sistemas mais modernos trazem consigo um dispositivo que desliga a alta tensão quando o detector por algum motivo se aquece. Suas janelas muito finas os tornaram aplicáveis à espectrometria. A flexibilidade dos detectores de HPGe, tanto do tipo planar ou coaxial, devido suas janelas muito finas os tornam aplicáveis também à espectrometria X (GILMORE, 1995).

Os detectores com estrutura planar são empregados, sobretudo para as radiações X e  $\gamma$  limitadas a algumas centenas de keV, porque eles têm uma boa resolução em energia associada a uma considerável eficiência, conforme foi dito anteriormente. A forma destes detectores torna-os particularmente sensíveis à incidência de fótons, daí seu emprego em espectrometria de baixas energias. Já os detectores com estrutura coaxial se aplicam bem onde aqueles com estrutura planar não se adequam visto que o coaxial se adapta bem à detecção das radiações X e gama de energia elevada. Acima de

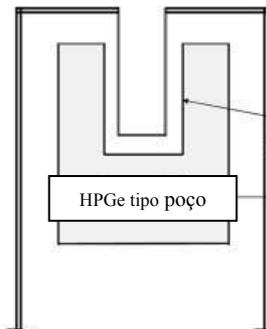
algumas centenas de keV, é preferível utilizar cristais com estruturas coaxiais, as quais são concebidas de forma a permitir obter volumes significativos. Os detectores de formato coaxial apresentam uma eficiência relativamente alta associada às dimensões do cristal, uma boa resolução em energia e em tempo e uma excelente razão pico-Compton (GILMORE, 1995).



**Figura 5. 1: Detector de HPGe tipo horizontal com seus componentes**

### 5.1.1 Composição experimental 1: Detector tipo poço ou “d2” e eletrônica associada

O detector de HPGe tipo poço, modelo GWL – 120 – 15, com eficiência intrínseca de 70% foi montado em sua blindagem de acordo com as especificações técnicas recomendadas pelo fabricante EGG & ORTEC<sup>®</sup>, conforme mostra a figura 5.2:



**Figura 5. 2: Detector de HPGe tipo poço real/corte longitudinal**

A eletrônica específica associada é dada por:

- Pré-Amplificador ORTEC<sup>®</sup> SÉRIE:51-TN50979A;
- Amplificador ORTEC<sup>®</sup> MODELO 572;
- Um analisador Multicanal (MCA) ORTEC<sup>®</sup> MODELO 927;
- NIN BIM ORTEC mod 4001;
- Fonte HV ORTEC<sup>®</sup> modelo 459;
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO;
- Blindagem correspondente;

### **5.1.2 Composição experimental 2: Detector planar “d4” e eletrônica associada**

O detector de HPGe planar – (modelo GL 2020R) com 20% de eficiência intrínseca e janela de Be para detecção de raios X, foi montado em sua blindagem de acordo com as especificações técnicas recomendadas pelo fabricante CANBERRA<sup>®</sup>, conforme mostra a figura 5.3:

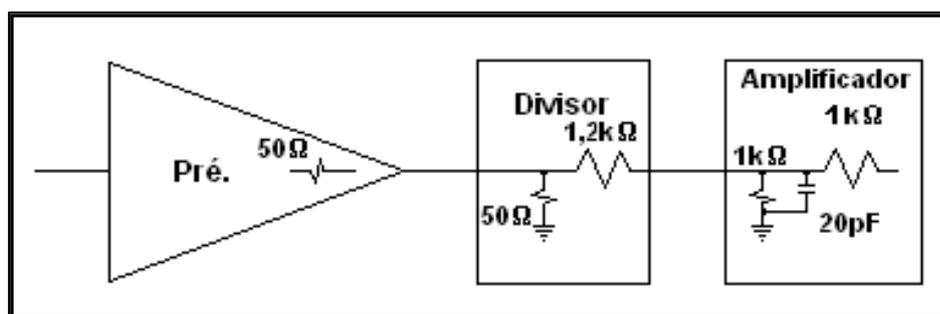


**Figura 5. 3: Detector de HPGe tipo planar**

A eletrônica específica associada é dada por:

- Pré-Amplificador CANBERRA<sup>®</sup> SÉRIE:30-T65A;
- Amplificador ORTEC<sup>®</sup> MODELO 572;
- Um analisador Multicanal (MCA) ORTEC<sup>®</sup> MODELO 927;
- NIN BIM ORTEC mod 4001;
- Fonte HV ORTEC<sup>®</sup> modelo 459;
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO;
- Blindagem correspondente

Com o objetivo de ampliar a faixa de trabalho do detector, utilizou-se um dispositivo para dividir o sinal que sai do pré-amplificador, chamado divisor de tensão (CAPUANO, 2006). Este dispositivo foi acoplado à saída do pré-amplificador. A representação do divisor de tensão está mostrada na Figura 5.4 e este mecanismo permitiu alcançar energias em torno de 1200 keV (GILMORE, 1995).



**Figura 5. 4: Divisor de Tensão**

### 5.1.3 Composição experimental 3: Detector coaxial “d3” e eletrônica associada

O detector de Detector HPGe Coaxial MODELO: GMX 70 P495/SÉRIE:51-TN50979A; com 40% de eficiência intrínseca, conforme mostra a figura 5.5, foi montado em sua blindagem de acordo com as especificações técnicas recomendadas pelo fabricante ORTEC<sup>®</sup>, conforme mostra a figura 5.5:



**Figura 5. 5: Detector de HPGe tipo coaxial**

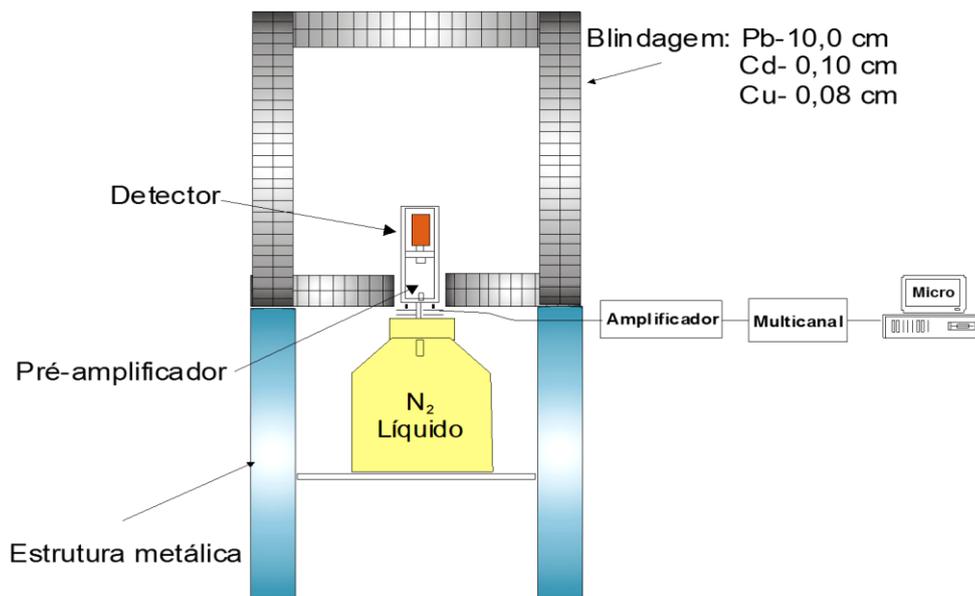
A eletrônica específica associada é dada por:

- Pré-Amplificador ORTEC<sup>®</sup> SÉRIE:51-TN50979A;
- Amplificador ORTEC<sup>®</sup> MODELO 572;
- Um analisador Multicanal (MCA) ORTEC<sup>®</sup> MODELO 927;
- NIN BIM ORTEC mod 4001;
- Fonte HV ORTEC<sup>®</sup> modelo 459;
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO;
- Blindagem correspondente

#### **5.1.4 Detalhamento dos componentes experimentais**

- **BLINDAGEM**

A blindagem utilizada para todos os sistemas, conforme mostrado nas figuras anteriores, é composta por blocos de chumbo de espessuras identificadas na figura 5.6 juntamente com folhas de Cádmio e Cobre formando um volume livre interno de 1 m<sup>3</sup>, a fim de garantir a menor interferência possível, isolando o sistema fonte-detector 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 5. 6: Blindagem associada aos sistemas de detecção  
(Adaptado de: DELGADO, 2000)**

- **ELEMENTOS ELETRÔNICOS E UNIDADES DE PROCESSAMENTO DE SINAIS**

O sinal de saída da maioria dos detectores é um sinal elétrico. Há então uma enorme variedade de equipamentos eletrônicos que são utilizados em sistemas de detecção nuclear. Como foi explicitado nos primeiros capítulos deste manuscrito, um dos objetivos estabelecidos era o de fazer uma análise crítica da instrumentação utilizada a fim de estabelecer uma nova abordagem para o uso de alguns elementos de eletrônica utilizados.

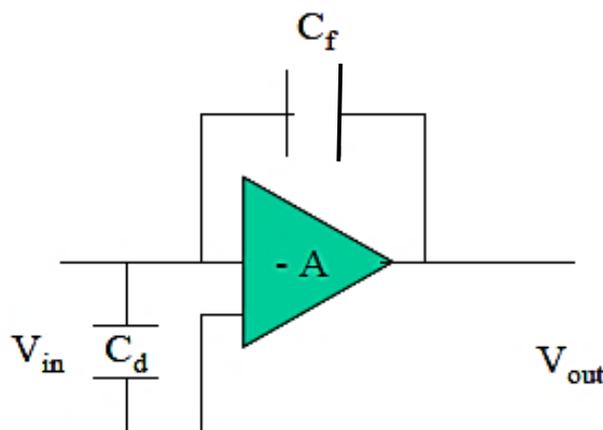
Com a evolução dos módulos eletrônicos ao longo dos anos, houve um aumento do uso das unidades de processamento de sinais na física em geral. Um conceito que evoluiu bastante ao abordarmos a raiz do processamento de pulsos oriundos dos detectores de radiação é a impedância dos módulos que realizam o processamento de sinal. Na maioria das aplicações, os valores de impedância de entrada dos módulos são altas de modo a evitar uma sobrecarga excessiva. Entretanto, os sistemas mais modernos nos entregam sistemas que apresentam o mínimo de impedância possível (KNOLL, 2003).

Portanto, a escolha dos módulos eletrônicos não deve ser feita de maneira aleatória. É necessário conhecer o sistema de trabalho e qual a finalidade a qual ele é destinado a fim de estabelecer a melhor combinação possível dos módulos.

#### ✓ Pré-amplificadores

Praticamente todos os detectores de radiação fornecem na sua saída um pulso de carga  $Q$  que é produzido pela radiação incidente. O primeiro elemento na cadeia de processamento de um sinal é o pré-amplificador. A função básica do pré-amplificador é amplificar sinais fracos provenientes de um detector e fazer o casamento de impedâncias entre a saída do detector (com alta impedância), fornecendo uma baixa impedância de saída para a entrada do amplificador. Desde que os sinais de entrada são muito fracos, o pré-amplificador é geralmente montado tão perto quanto possível do detector. Deste modo, as perdas num cabo coaxial são minimizadas. O pré-amplificador pode ser visto como um amplificador de alto ganho (KNOLL, 2003).

Existem três tipos de pré-amplificadores: os sensíveis à carga, os sensíveis à corrente e os sensíveis à tensão. Os detectores semicondutores de HPGe fazem uso de pré-amplificadores sensíveis à carga e isto se deve a um fator que deve ser analisado criticamente (KNOLL, 2003)



**Figura 5. 7: Pré-amplificador sensível à carga**

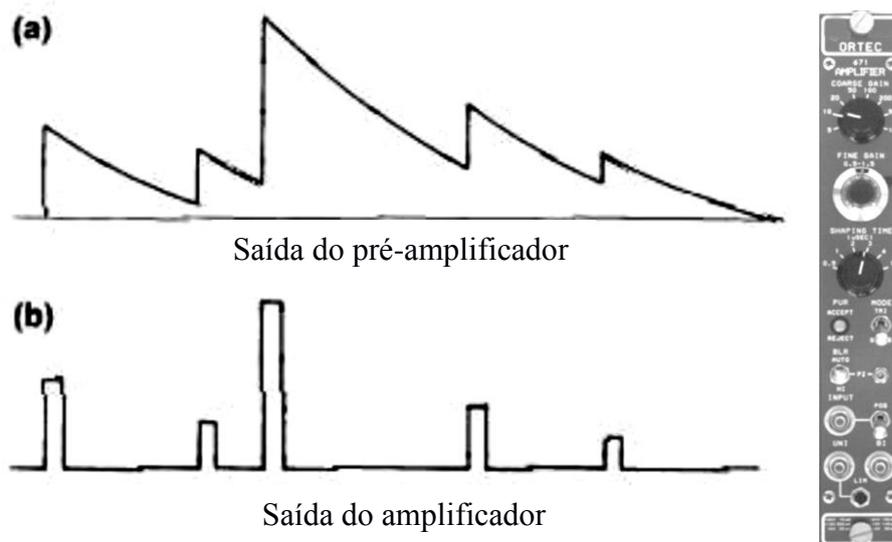
#### ✓ Amplificadores

As funções do amplificador são: amplificar o sinal proveniente do pré-amplificador e dar uma forma conveniente a ele (conformar o pulso), para posterior processamento. Em ambos os casos, o amplificador deve sempre preservar a informação de interesse. Em espectroscopia, a informação que nos interessa está na informação da

altura do pulso, e, portanto, a proporcionalidade entre o sinal de entrada e o de saída deve ser preservada utilizando um amplificador linear. Para o amplificador usado em espectroscopia, um dos parâmetros mais importantes é a forma do pulso. Em geral, o pulso proveniente do pré-amplificador pode ser caracterizado como uma expressão com uma longa cauda que vai desde alguns microssegundos até 100 microssegundos (KNOLL, 2003).

A amplitude vai ser proporcional à energia. Se um segundo sinal deve chegar dentro do período de duração do primeiro, ele se localizará no final do primeiro e sua amplitude será aumentada, conforme mostrado na parte a da Fig. 5.8 A informação sobre a energia será distorcida (KNOLL, 2003). Este fenômeno é conhecido como empilhamento (*pileup*). Este efeito ocorre predominantemente para fontes muito ativas, o que dificulta a aplicação do método pico-soma caso sejam verificados estes tipos de fenômenos. Para evitar este efeito, devemos nos restringir a taxa de contagens menores do que  $1/\tau$ , onde  $\tau$  é o tempo de subida e saída do sinal (GILMORE, 1995).

Uma segunda razão para a conformação do pulso consiste da otimização da razão sinal/ruído. Para um dado espectro de ruído, usualmente há uma forma de pulso que minimiza o ruído. Isto pode ser melhor compreendido olhando as componentes de Fourier do sinal e do ruído. Otimizar a razão sinal/ruído significa filtrar frequências onde o ruído é maior, ou seja, estreitando a largura de banda. O que de fato irá interessar é a amplitude na face anterior do sinal e não o longo decaimento (GILMORE, 1995).

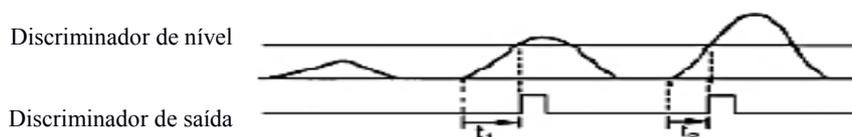


**Figura 5. 8: Sinais de saída dos módulos/ amplificador à direita**

✓ **Multicanal de aproximações sucessivas (MCA) associado a um analisador de altura de pulso**

Este é um dos elementos mais importantes em se tratando da escolha de módulos eletrônicos de modo a aperfeiçoar a medição de um radioisótopo. Os analisadores multicanais sofisticados vão ordenando os pulsos que chegam de acordo com sua altura, além de contar este número de pulsos e armazená-los em uma memória do multicanal. O conteúdo de cada canal pode ser enviado para um *software* de exibição espectral que vai mostrar em uma tela de computador o espectro de alturas de pulso (GILMORE, 1995).

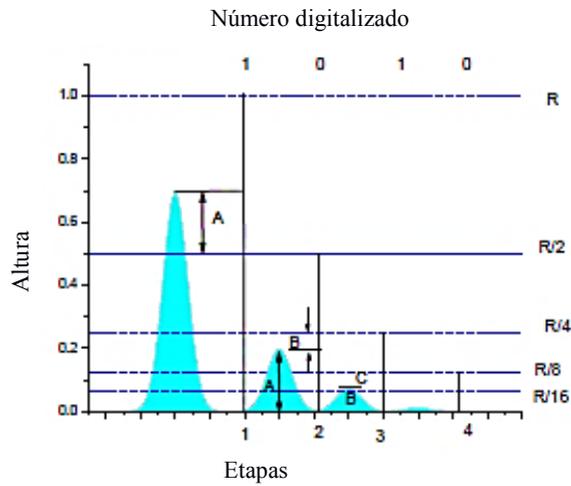
O analisador de altura de pulso, mais conhecido como *Single channel analyser* é um discriminador de pulsos que vai classificar os sinais analógicos que chegam de acordo com um limite superior e inferior cujos pulsos que chegam fora deste intervalo acabam por não ser contados e registrados em sua memória. A escolha deste discriminador pode ser feita para dois modos de operação: Modo diferencial (normal ou janela) e modo integral (GILMORE, 1995). De maneira sucinta, foi escolhido o modo integral, visto que este não apresenta quaisquer limites, registrando, portanto, pulsos dentro do limiar mínimo de detecção até o limite de SCA (em torno de 10 V).



**Figura 5. 9: SCA em modo diferencial**

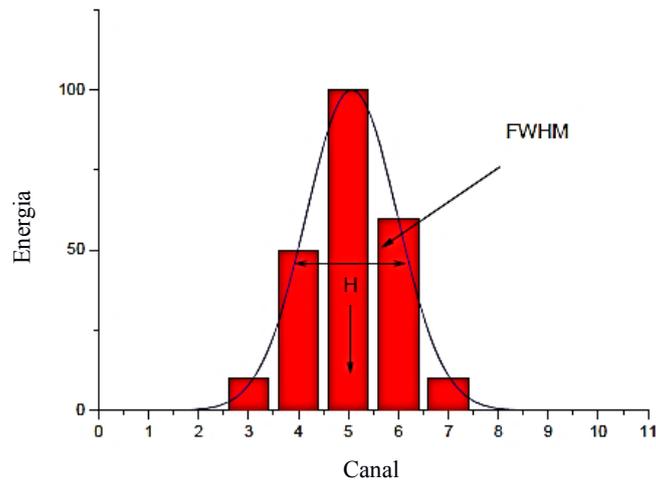
Considerando a eletrônica mais antiga e estabelecendo um paralelo com a instrumentação utilizada por Brinkman em 1963, podemos explicitar o método da rampa ou método *Wilkinson*. Nesta técnica o sinal de entrada é utilizado para carga e descarga do capacitor. O capacitor é descarregado a uma taxa constante e um contador associado registra o período da descarga do capacitor. Ocorre que este tipo de metodologia agrega uma quantidade de erros muito maior quando comparado ao método das aproximações sucessivas onde o pulso de entrada também é comparado a uma série de voltagens de referência para então determinar a altura de pulso. O método de aproximações sucessivas torna-se um grande aliado do sistema de medição uma vez

que a determinação da altura de pulso ocorre de maneira mais rápida e com maior precisão (GILMORE, 1995).



**Figura 5. 10: Método das aproximações sucessivas**

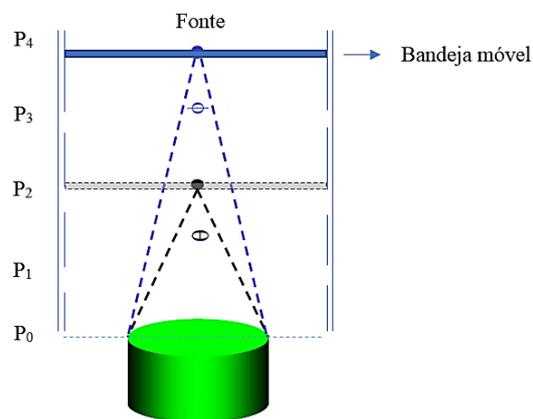
Dois fatores determinam a escolha do número de canais que devem ser usados num MCA para qualquer medida de distribuição de pulsos: a resolução e o número total de contagens que pode ser obtida. Se um número arbitrariamente grande de contagens pode ser acumulado, não há problema algum em fazer o número de canais tão grande quanto desejarmos. Com um número muito grande de canais, a largura de qualquer canal pode ser bem pequena e o espectro discreto resultante será uma aproximação muito boa de uma distribuição contínua (GILMORE, 1995). Se há picos no espectro, pelo menos três ou quatro canais devem ser utilizados para a largura à meia altura (FWHM) de cada pico. A Figura 5.11 mostra o efeito da escolha do número de canais. Aqui utilizamos um multicanal com 16000 canais.



**Figura 5. 11: Escolha do número de canais em um multicanal**

### 5.2 Suporte fixador de geometria

Para a realização das medições foi necessário utilizar um suporte fixador de geometria, uma vez que se trata de uma peça importante que vai garantir o correto posicionamento da fonte sobre o detector sem folgas, garantindo por sua vez a reprodutibilidade das medições. As distâncias utilizadas consistem em:  $p_4 = 20$  cm,  $p_2 = 10$  cm e  $p_0$  como sendo a referência da fonte apoiada sobre o detector.



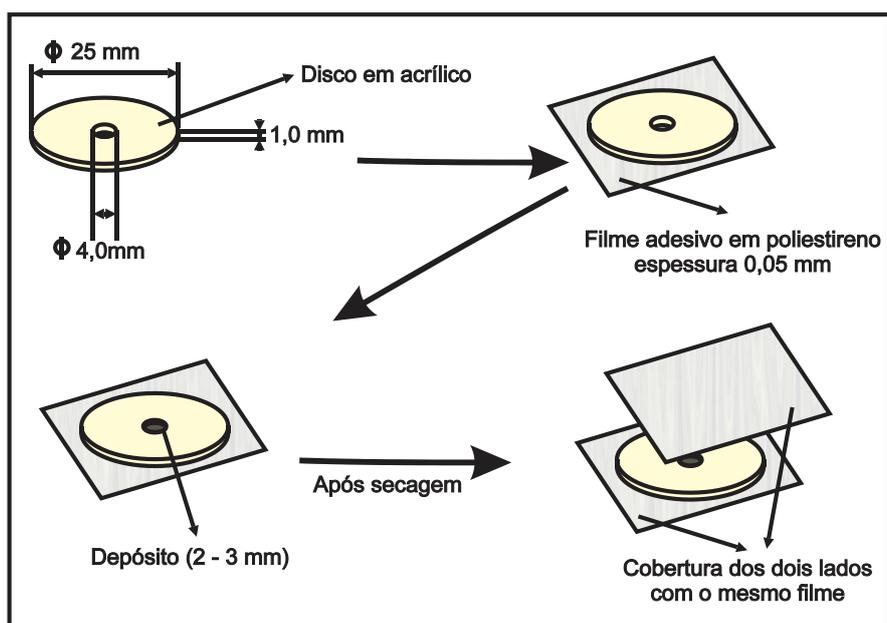
**Figura 5. 12: Suporte fixador de geometria no formato bandeja para as respectivas distâncias:  $P_4 = 20$  cm,  $P_3 = 15$  cm,  $P_2 = 10$  cm,  $P_1 = 5$  cm e  $P_0 = 0$  cm**

Os antigos suportes fixadores de geometria eram feitos em PVC e tinham um formato cilíndrico com 2 cm de largura que se adaptavam à superfície do detector. Entretanto, durante a visita da pesquisadora do BIPM Marie Christine Lèpy, foram discutidos diversos aspectos a respeito da interferência de elementos externos no

processo de medição e o uso destes tipos de fixadores foi reprovado visto que o corpo do suporte funcionaria como material atenuador, o que reduziria em um percentual a intensidade dos fótons e dos raios X podendo até absorvê-los dependendo da sua energia. Os novos suportes no formato bandeja eliminam este empecilho e tornaram-se mais práticos para o posicionamento das fontes puntiformes.

### 5.3 Confeção de fontes puntiformes

As fontes foram preparadas com o auxílio de um picnômetro (dispositivo contagotas), 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. Para as medições executadas no detector tipo poço foram feitos anéis com diâmetro externo de 15 mm. A Figura 5.13 ilustra o esquema de montagem das fontes (OLIVEIRA, 2012)



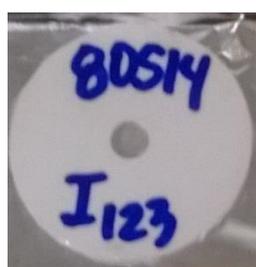
**Figura 5. 13: Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes (Adaptado de: DELGADO, 2000)**

utilizando uma balança Mettler Toledo modelo MT-5.



**Figura 5. 14: Balança utilizada na confecção de fontes (Mettler e Toledo)**

A Figura 5.15 apresenta um exemplo de fonte confeccionada para a finalidade de calibração.



← Código da fonte  
← Radionuclídeo

**Figura 5. 15: Fonte puntiforme para padronização absoluta**

A quantidade de fontes preparadas para as diversas medições nos sistemas de espectrometria são dadas nas tabelas seguintes:

**Tabela 5. 1: Fontes puntiformes de:  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  e  $^{121}\text{Te}$  para padronização absoluta pelo método pico-soma e método relativo da curva de eficiência (PT02C-004 Preparação de fontes radioativas padronizadas. SUITE SE, IRD/CNEN, 2018).**

Radionuclídeo	Quantidade de fontes preparadas
$^{22}\text{Na}$	06S16, 07S16, 08S16, 09S16, 10S16 (TOTAL: 5 FONTES PUNTIFORMES) data de referência: 14/01/2016
$^{54}\text{Mn}$	17S06, 18S06, 19S06, 20S06, 21S06

	(TOTAL: 5 FONTES PUNTIFORMES)
	<b>data de referência: 09/05/2016</b>
	44S16, 45S16, 46S16
<sup>60</sup> Co	(TOTAL: 3 FONTES PUNTIFORMES)
	<b>data de referência: 20/10/2016</b>
	22S16, 23S16, 24S16, 25S16, 26S16
<sup>65</sup> Zn	(TOTAL: 5 FONTES PUNTIFORMES)
	<b>data de referência: 09/05/2016</b>
	172S14, 173S14, 174S14, 175S14, 176S14
<sup>121</sup> Te	(TOTAL: 5 FONTES PUNTIFORMES)
	<b>data de referência: 14/12/2014</b>

\*O horário de referência adotado pelo laboratório é 00:00:00

## 5.4 Confeções de curvas de eficiência e medição da atividade

### 5.4.1 Estabelecimento da curva de eficiência para o detector “d3” coaxial

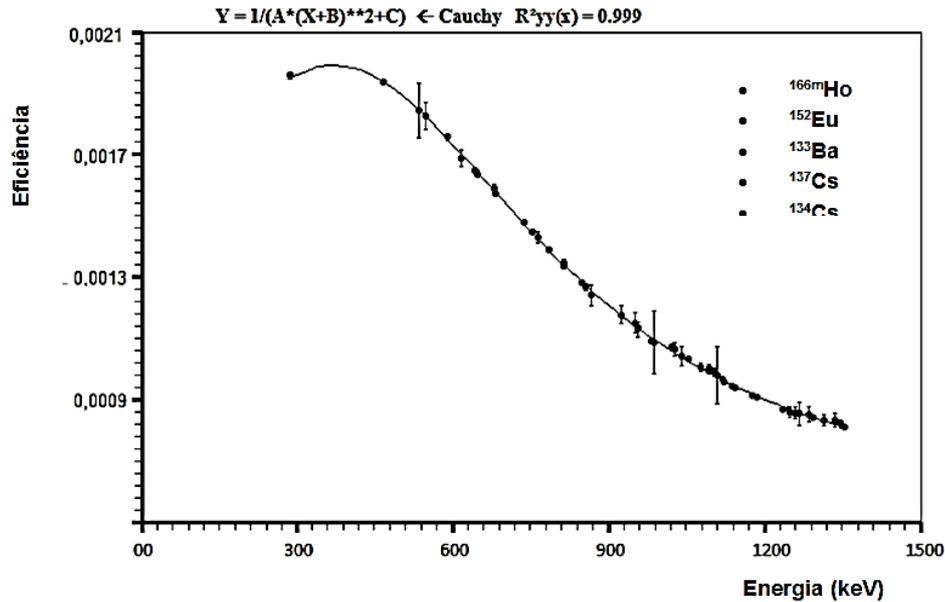
Para a composição da curva de eficiência de “d3” foram utilizados padrões na geometria puntiforme que estão listados na tabela 5.2.

**Tabela 5. 2: Padrões utilizados na confecção da curva de eficiência (SUITE SE IRD/CNEN, 2018).**

Radionuclídeo	Código
<sup>166m</sup> Ho	06S00
<sup>152</sup> Eu	04S00
<sup>133</sup> Ba	*
<sup>137</sup> Cs	37S97
<sup>134</sup> Cs	38S00

\*Padrão sem código

A confecção da curva de eficiência faz uso dos valores de eficiência de detecção para cada energia selecionada. Como foi visto no subitem 2.3.4, a curva possui um comportamento característico cuja função que ajusta os pontos é dada por um programa de ajuste matemático, que neste caso foi obtido através do LabFit<sup>®</sup>.



**Figura 5. 16: Curva de eficiência para padrões radionuclídicos**

A equação de ajuste selecionado pelo *software* de conformação de dados pode ser observada acima do gráfico representado na figura 5.16 que expõe os dados da curva de eficiência, e a qualidade da curva é atestada pelo fator  $R^2$  que, quanto mais próximo de 1, mais coerente será o ajuste dos pontos e melhor será a qualidade da curva de eficiência. Tendo estabelecido os pontos, é possível obter as eficiências para a amostra que se deseja calibrar através da interpolação dos pontos da curva. Aqui foram utilizados 53 pontos correspondentes ao par Energia *versus* Eficiência para a curva de eficiência.

#### 5.4.2 Metodologia de Confeção da curva de eficiência

Para confeccionar a curva de eficiência foram adotados os seguintes passos lógicos:

1. Com o sistema de espectrometria previamente calibrado em energia conforme descrito no subitem 5.3, deve-se fazer o levantamento da radiação de fundo do ambiente. Isto é feito com o sistema fechado, sem amostra ou padrão dentro do sistema. Inicia-se a contagem da radiação de fundo através do botão “start” do software de aquisição de dados por um período de 3 dias. Após a obtenção do espectro, o mesmo deve ser armazenado na plataforma de dados do software.
2. Selecionar um padrão puntiforme e posicioná-lo na geometria selecionada pelo operador, no caso, uma distância  $d = 20$  cm (P4), em relação ao topo do detector.

Iniciar a aquisição do espectro pelo *software* durante um intervalo de tempo de 24 horas. Repetir o procedimento para cada padrão e armazenar os espectros com identificação apropriada, respeitando as normas de qualidade do laboratório para a identificação dos mesmos.

3. O processamento de dados deve ser iniciado a partir do abatimento da radiação de fundo do espectro medido. Isto é feito a partir do comando de subtração espectral que preservará apenas as contagens provenientes da fonte ou amostra que foi medida.
4. Inicia-se a marcação da área dos picos de energia e através de um comando específico e obtêm-se as contagens referentes a aquele pico e sua respectiva incerteza. Deve-se armazenar numa planilha eletrônica do EXCEL<sup>®</sup> contendo outros dados obtidos do software tais como: contagem total do espectro, tempo vivo, tempo real, tempo morto, data e hora da medição. Depois de armazenar os dados na planilha, deve-se obter um valor de eficiência para cada energia selecionada. O procedimento de correção de decaimento deve ser feito para o período de medição do padrão em relação à data de referência. Este procedimento deve ser repetido para outros padrões.
5. Na última etapa, deve-se registrar numa planilha à parte os valores de todas as energias de todos os padrões (identificando cada uma delas) juntamente com a eficiência e incerteza correspondente. Os dados devem ser ordenados de maneira crescente de acordo com a energia de menor valor e a partir daí os dados podem ser enviados para o software LABFIT<sup>®</sup> que irá fornecer o melhor ajuste para a distribuição dos pontos medidos.

#### **5.4.2 Metodologia de obtenção do valor de atividade a partir da curva de eficiência**

Uma vez estabelecida a curva de eficiência para o detector coaxial, passaremos agora a metodologia de obtenção da atividade a partir da curva de eficiência:

1. A partir de uma planilha padrão do laboratório que possui todas as fórmulas para cálculo de atividade e incertezas armazenadas em sua memória, deve-se armazenar nela os valores das eficiências que sejam correspondentes à aquela energia que se deseja calibrar. Isto é feito geralmente a partir da interpolação de dois pontos próximos que contenham o valor de energia a qual se deseja obter a eficiência.

- Estes dois pontos definirão um intervalo cuja interpolação sobre eles gerará a respectiva eficiência que deverá ser aplicada a formula que foi definida no item 3.4.
2. O valor da eficiência deve ser registrado na planilha de cálculo juntamente com sua incerteza. Logo após, a planilha será preenchida com os valores das contagens dos picos da amostra, incertezas nas áreas dos picos, tempo morto, tempo vivo, data e hora da medida. O procedimento de correção de decaimento deve ser feito para o período de medição da fonte em relação à data de referência.
  3. Após verificar se não há erros no preenchimento da planilha, a mesma irá fornecer o valor da atividade juntamente com as incertezas tipo A, tipo B e total.

#### **5.4.3 Metodologia geral de aplicação do método pico-soma para padronização absoluta de radionuclídeos com decaimento simples**

O método pico-soma que foi deduzido no capítulo 4 juntamente com a propagação das incertezas é de fácil aplicação a partir de planilhas pré-programadas para execução de todos os cálculos que permitam obter o valor da atividade absoluta. Uma vez calibrada, a amostra torna-se um padrão primário que pode ser utilizado para uso do laboratório, desde que seja submetido a uma comparação-chave entre estes ou outros métodos primários. A metodologia é descrita conforme os passos lógicos dados a seguir:

1. As fontes a serem padronizadas devem ser medidas num ciclo de 24 horas e devem ter seu espectro armazenado na memória do software MAESTRO<sup>®</sup> do mesmo modo como foi descrito para medições de fontes para composição da curva de eficiência.
2. A partir do espectro da radiação de fundo deve-se fazer o abatimento do mesmo do espectro da fonte medida. O valor da soma total do espectro deve ser armazenado na planilha.
3. Devem ser registrados os valores das contagens dos picos gama e X e o respectivo pico-soma correspondente, juntamente com as incertezas das contagens fornecidas pelo software.
4. Deve-se calcular primeiramente o valor de R e sua respectiva incerteza, de acordo com as fórmulas demonstradas no capítulo 4.
5. O procedimento de extrapolação para zero deve ser aplicado da seguinte forma: uma marcação na região inicial do espectro deve ser feita para duas regiões de estabilidade e a subtração destas áreas deve ser realizada. Logo após a marcação da

região de interferência da abertura do multicanal, o valor deve ser subtraído da diferença das áreas marcadas anteriormente. O resultado dessa subtração deve ser acrescido ao valor de N total.

6. A partir daí calcula-se a atividade com a fórmula do pico-soma a partir dos termos N total e R obtidos anteriormente. O resultado deverá ser corrigido para a data de referência.

A aplicação do método pico-soma vai variar de acordo com cada radionuclídeo analisado. Para radionuclídeos de decaimento simples a fórmula é aplicada diretamente sem maiores dificuldades. A seguir, será apresentada uma metodologia simplificada para a padronização de cada radionuclídeo escolhido.

### 5.5 Padronização absoluta do $^{22}\text{Na}$

O  $^{22}\text{Na}$  é um radionuclídeo que decai via emissão de pósitron ou  $\beta^+$  e possui uma meia-vida relativamente longa com 2,6 anos. Por apresentar energias bem discretas e por ocorrer a soma dos gamas emitidos, é possível aplicar a metodologia de padronização por pico-soma para este radionuclídeo (NUCLÉIDE-LARA, 2018). As energias selecionadas são:

**Tabela 5. 3: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área:  $^{22}\text{Na}$ .**

Picos	Área
<b>aniquilação</b>	N(511 keV)
Soma (511+511) keV	N(1022 keV)
<b>Gama</b>	N(1274 keV)
Soma (511+1274) keV	N(1785 keV)
Soma (1022+1274) keV	N(2296 keV)

O  $^{22}\text{Na}$  apresenta a possibilidade de duas somas distintas além da soma proveniente da aniquilação. Logo, para este caso teremos dois valores para o parâmetro R e, portanto, dois valores de atividade. Estes valores devem ser iguais. Para ligeiras diferenças, pode-se adotar a média das duas atividades para representar a atividade absoluta do padrão.

### 5.6 Padronização absoluta do $^{65}\text{Zn}$

O  $^{65}\text{Zn}$  decai 97,5% por captura eletrônica e cerca de 2,5% por  $\beta^+$  para o estado fundamental. A captura eletrônica é representada por uma radiação gama de 1115,5 keV e outros dois gamas menos representativos. Isto torna-o um radionuclídeo praticamente monoenergético e poderão ser observadas as aniquilações provenientes da emissão  $\beta^+$ . Há ainda que se considerar o raio X de 5 keV proveniente da captura eletrônica e que se somará ao gama monoenergético os quais produzirão o pico-soma. A tabela mostra as energias consideradas:

**Tabela 5. 4: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área:  $^{65}\text{Zn}$ .**

Picos	Área
Raio X (8 keV)	N(8 keV)
aniquilação	N(511 keV)
gama (1115 keV)	N(1115 keV)
Soma (1115 + 8) keV	N(1123 keV)

### 5.7 Padronização absoluta do $^{60}\text{Co}$

O  $^{60}\text{Co}$  é o radionuclídeo mais simples dentre os radioisótopos escolhidos para padronização. É um radionuclídeo que decai por  $\beta^-$  para o estado fundamental. Este radionuclídeo foi escolhido devido a simplicidade de aplicação do método e suas energias que mediam o pico-soma são dadas na tabela que segue:

**Tabela 5. 5: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área:  $^{60}\text{Co}$ .**

Picos	Área
gama (1173 keV)	N(1173 keV)
gama (1332 keV)	N(1332 keV)
Soma (1173+ 1332) keV	N(2505 keV)

### 5.8 Padronização absoluta do $^{54}\text{Mn}$

O  $^{54}\text{Mn}$  decai por captura eletrônica para o estado fundamental. É um radioisótopo de interesse para o laboratório, pois facilita a execução de teste de

estabilidade dos sistemas de espectrometria. As energias que mediaram o efeito soma são mostradas na tabela a seguir:

**Tabela 5. 6: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área:  $^{54}\text{Mn}$ .**

Picos	Área
<b>Raio-X (5 keV)</b>	N(5 keV)
<b>gama (834 keV)</b>	N(834 keV)
<b>Soma (834+ 5) keV</b>	N(839 keV)

### 5.9 Padronização absoluta do $^{121}\text{Te}$

O  $^{121}\text{Te}$  é um radioisótopo que possui meia-vida de 19,6 dias e que decai por captura eletrônica para o nível estável do  $^{121}\text{Sb}$  com gama de 88,6% de probabilidade de emissão. Na etapa de padronização absoluta foi considerada a região dos raios X onde são considerados os picos devidos à  $K\alpha$  e  $K\beta$ , picos estes devidos ao processo de captura eletrônica compreendidos no intervalo de (26 – 30 keV) e também os dois picos de radiação gama representados pelo 507 keV e 573 keV, consequentes do processo de captura eletrônica.

Devido à complexidade para padronizar este radioisótopo, foi desenvolvida uma metodologia específica para obter o valor de atividade uma vez que a ocorrência de impurezas radionuclídicas na solução mãe atrapalha a visualização do espectro, além de proporcionar um aumento nas taxas de contagem que não são originárias do radioisótopo de interesse. Para acessar toda a metodologia desenvolvida para viabilizar a obtenção da grandeza atividade bem como sua incerteza, a obra “*Padronização Absoluta do  $^{121}\text{Te}$  por espectrometria gama utilizando o método pico-soma*” pode ser consultada (ARAÚJO, M. T., 2016).

**Tabela 5. 7: Picos de energia total e suas respectivas somas para cada área:  $^{121}\text{Te}$**

Picos	Área
<b>Raio X</b>	N(keV)
<b>Gama (507) keV</b>	N(507keV)
<b>Soma (507 + X) keV</b>	N(keV)

Gama (573) keV	N(573 keV)
Soma (573 + X) keV	N(keV)

### 5.10 Aplicação de correções

Ao longo do desenvolvimento da metodologia foram descritos alguns eventos que podem ocorrer durante uma medição. Alguns destes eventos precisam ser corrigidos para não gerar interferências nos resultados. Um dos efeitos que já foi mencionado e cujas correções necessitam ser feitas é para o decaimento radioativo. Durante o tempo que as fontes radioativas são medidas, ocorrem perdas nas taxas de contagem devidas ao decaimento radioativo. A correção destas perdas torna-se necessária principalmente nos radionuclídeos de meia-vida curta, onde estas perdas mostram-se mais significativas. A equação utilizada é dada a seguir:

$$N = N_0 F_D F_R \quad (4.54)$$

Em que

$$F_D = \frac{\lambda t_c}{1 - e^{-\lambda t_c}} \quad (4.55)$$

$$F_R = e^{-\lambda t} \quad (4.56)$$

Onde,

$N$  Atividade da fonte na data de referência;

$N_0$  Atividade da fonte no instante inicial de contagem;

$\lambda$  É a constante de decaimento ( $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ )

$F_D$  fator de correção de decaimento durante o tempo de contagem  $t_c$ .

$F_R$  fator de correção de decaimento para a data de referência, após decorrido o tempo  $t$ .

#### 5.10.1 Tempo Morto

O tempo mínimo que existe entre a detecção de dois eventos de modo a serem detectados como dois pulsos separados é chamado de tempo morto. Por ser o

decaimento radioativo de natureza estatística, há sempre uma probabilidade de que um evento real seja perdido visto que pode ocorrer um outro evento em simultaneidade. Esta perda pode ser significativa quando altas taxas de contagens estão presentes. Esta correção de tempo morto é feita pelo analisador multicanal, entretanto, para as medições feitas neste trabalho, não foram percebidos efeitos de tempo morto visto que a atividade das fontes era bem baixa.

### 5.10.2 Radiação de Fundo

A Correção da radiação de fundo foi feita para todas as etapas de medições utilizando as ferramentas de subtração espectral do software MAESTRO®.

### 5.10.3 Correlação Angular para o $^{60}\text{Co}$

A correlação direcional gama-gama pode ser considerada para a cascata pura  $\gamma$ - $\gamma$ ,  $I_i \rightarrow I \rightarrow I_f$  para ambos os raios gama com multipolos  $L_1$  e  $L_2$ . Partindo da equação 3.1, o termo  $P_K(\cos \theta)$  pode ser expandido em um polinômio de Legendre. Assim sendo, é mais conveniente escrever a correlação angular entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  como sendo:

$$W(\theta) = 1 + A_{22}P_2(\cos \theta) + \dots + A_{K_{\text{máx}}}P_{K_{\text{máx}}}(\cos \theta)$$

Os coeficientes  $A_K$  e  $A_{22}$  podem ser obtidos na página 1197 (SIEGBAHN, 1965) para o  $^{60}\text{Co}$  considerando a cascata 4(2)2(2)(0):

$$A_{00} = 1$$

$$A_{22} = 0,1020$$

$$A_{44} = 0,0091$$

Substituindo na equação de  $W(\theta)$ , teremos:

$$W(\theta) = 1,111$$

O valor obtido de  $W(\theta)$  deverá ser multiplicado ao valor de  $N$  para então obter o valor de atividade corrigido para o  $^{60}\text{Co}$ .

## **Capítulo 6**

### **RESULTADOS E DISCUSSÕES**

Após toda a exposição realizada nos capítulos anteriores, neste tópico serão apresentados os resultados e as discussões decorrentes dos processos de medições. Primeiramente, será discutida a abordagem teórica e seus desdobramentos e posteriormente serão apresentados os valores das padronizações absolutas que servirão como objetos de comprovação da teoria apresentada.

#### **6.1 Discussão da abordagem teórica**

Ao iniciar o capítulo 2, foram abordados aspectos históricos a respeito da literatura mais importante que foi desenvolvida antes, durante e após estabelecimento do método pico-soma. Pôde-se constatar a influência da evolução dos aparatos experimentais para a obtenção dos valores de atividade e da medição dos parâmetros nucleares. E pôde-se observar sobretudo a propagação de uma restrição conceitual estabelecida por Brinkmann quando este escreveu seus manuscritos. Até os dias de hoje se encontram publicações que ressaltam o fator 100% para ocorrência dos gamas.

Ainda em publicações atuais é possível verificar a disseminação de equívocos conceituais atribuídos ao método pico-soma. Um trabalho recente publicado por um pesquisador japonês, Yoshimune Ogata faz a proposição de uma modificação no método pico-soma para aplicação na área ambiental. Apesar de comprovada a teoria por ele proposta, ainda faz ressalvas e exige o percentual 100% para as emissões gama (OGATA, 2016).

Provou-se, a partir da inclusão dos parâmetros de probabilidade de emissão, que não se faz necessário o uso de qualquer tipo de fixação de percentual referente à emissão X ou gama. A partir da substituição destes parâmetros, foi possível chegar a equação original adotada por Brinkman e foi possível também fazer a propagação das incertezas pelo método de Poisson a fim de obter valores mais precisos.

#### **6.2 Padronização Absoluta do $^{22}\text{Na}$**

A padronização absoluta do  $^{22}\text{Na}$  foi estabelecida para o método pico-soma no detector tipo poço e para a curva de eficiência do detector “d4”. Os valores de atividade bem como os valores de incertezas encontram-se listados nas tabelas a seguir:

**Tabela 6. 1: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o  $^{22}\text{Na}$**

Radionuclídeo $^{22}\text{Na}$	Atividade (kBq)		Incertezas		Atividade (kBq)		Incertezas	
	Método Curva de Eficiência			Método pico-soma				
	A <sub>1</sub>	U <sub>A</sub> %	U <sub>B</sub> %	A <sub>2</sub>	U <sub>A</sub> %	U <sub>B</sub> %		
<b>06S16</b>	1,317	0,16	0,3	1,188	0,03	0,23		
<b>07S16</b>	2,563	0,05	0,3	2,418	0,02	0,23		
<b>08S16</b>	1,546	0,15	0,3	1,470	0,02	0,23		
<b>09S16</b>	3,373	0,10	0,3	3,364	0,02	0,23		
<b>10S16</b>	1,838	0,13	0,4	1,951	0,26	0,34		

Excetuando-se a fonte 06S16, podemos perceber que os valores de atividade são compatíveis a menos de 6%, considerando-se o valor das incertezas (os desvios se encontram calculados no ANEXO E). O método absoluto fornece os valores com menor incerteza em relação ao método relativo e esta é uma característica dos métodos absolutos pico-soma incluído. Abaixo se observa as tabelas com o balanço de incertezas para o  $^{22}\text{Na}$  para ambos os métodos.

**Tabela 6. 2: Incertezas do método pico-soma para o  $^{22}\text{Na}$**

Componentes de incerteza	A (%)	B (%)
<b>Tempo vivo</b>	-	0,01
<b>Meia-vida</b>	-	0,05
<b>Radiação de fundo</b>	-	0,02
<b>Decaimento</b>	-	0,01
<b>Estatística de contagem</b>	0,05	
<b>Incerteza Combinada (k = 1)</b>	0,10	
<b>Incerteza Expandida (k = 2)</b>	0,20	

**Tabela 6. 3: Incertezas do método curva de eficiência para o  $^{22}\text{Na}$**

Radionuclídeo	$^{22}\text{Na}$	
Incertezas	A (%)	B (%)

<b>Estatística de contagem</b>	0,23
<b>Curva de eficiência</b>	- 0,56
<b>Geometria de pesagem</b>	- 0,20
<b>Meia-vida</b>	- < 0,1
<b>Tempo-vivo</b>	- < 0,1
<b>Probabilidade de emissão gama (P<math>\gamma</math>)</b>	- 0,02
<b>Incerteza relativa <math>u</math> (%)</b>	0,64
<b>Incerteza expandida <math>U</math> (%) (<math>k=2</math>)</b>	1,28

Os resultados obtidos para o  $^{22}\text{Na}$  apresentam razoável concordância entre os métodos considerando o *budget* de incertezas. Entretanto, os valores de incerteza tanto para curva quanto para o método pico-soma ficaram um pouco acima do esperado. Isto se deve ao fato de a estatística de contagem estar puxando o aumento da incerteza. Isto pode ser resolvido aumentando o tempo de contagem das fontes e / ou normalizando os valores de massa por meio da representação do valor da atividade (por unidade de massa) em termos de concentração.

### 6.3 Padronização Absoluta do $^{65}\text{Zn}$

A determinação do  $^{65}\text{Zn}$  foi estabelecida para o método pico-soma no detector “d4” e para a curva de eficiência do detector “d3”. Os valores de atividade bem como os valores de incertezas também se encontram listados nas tabelas a seguir:

**Tabela 6. 4: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o  $^{65}\text{Zn}$**

Radionuclídeo $^{65}\text{Zn}$	Atividade (kBq)	Incertezas		Atividade (kBq)	Incertezas	
		$U_A\%$	$U_B\%$		$U_A\%$	$U_B\%$
		Método Curva de Eficiência		Método pico-soma		
		$U_A\%$	$U_B\%$		$U_A\%$	$U_B\%$
<b>22S16</b>	3,186	0,25	0,34	2,887	0,27	0,7
<b>23S16</b>	2,959	0,26	0,34	2,315	0,46	0,7
<b>24S16</b>	3,572	0,26	0,34	3,723	0,18	0,7
<b>25S16</b>	2,675	0,17	0,34	*	*	*
<b>26S16</b>	2,570	0,74	0,34	2,320	0,31	0,7

Para o  $^{65}\text{Zn}$  os resultados não foram satisfatórios e necessitam de uma nova medição. O método absoluto fornece os valores com menor incerteza em relação ao

método relativo, mas ainda assim os valores estão muito acima do esperado. Abaixo observa-se as tabelas com o balanço de incertezas para o  $^{65}\text{Zn}$  para ambos os métodos.

**Tabela 6. 5: Incertezas para o método pico-soma para o  $^{65}\text{Zn}$**

<b>Componentes de incerteza</b>	<b>A (%)</b>	<b>B (%)</b>
<b>Tempo vivo</b>	-	0,01
<b>Pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	0,05
<b>Radiação de fundo</b>	-	0,02
<b>Decaimento</b>	-	0,01
<b>Estatística de contagem</b>	0,18	
<b>Incerteza Combinada (k = 1)</b>		0,27
<b>Incerteza Expandida (k = 2)</b>		0,54

**Tabela 6. 6: Incertezas do método curva de eficiência para o  $^{65}\text{Zn}$**

<b>Radionuclídeo</b>	<b><math>^{65}\text{Zn}</math></b>	
<b>Incertezas</b>	<b>A (%)</b>	<b>B (%)</b>
<b>Estatística de contagem</b>	0,29	
<b>Curva de eficiência</b>	-	0,56
<b>Geometria de pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	< 0,1
<b>Tempo-vivo</b>	-	< 0,1
<b>Probabilidade de emissão gama (P<math>\gamma</math>)</b>	-	0,02
<b>Incerteza relativa <math>u</math> (%)</b>		0,67
<b>Incerteza expandida <math>U</math> (%) (k=2)</b>		1,35

Os resultados obtidos para o  $^{65}\text{Zn}$  não cumpriram com as expectativas com relação à precisão e exatidão dos valores obtidos. Mesmo os dados apresentados não atendendo às expectativas, os mesmos foram aceitos para publicação internacional, o que não inviabiliza os valores medidos. Entretanto, prezando pela qualidade e por saber de um desempenho mais elevado do sistema em outras medições do mesmo radionuclídeo, deve-se planejar uma nova rodada de medições a fim de obter melhores resultados.

#### 6.4 Padronização Absoluta do $^{60}\text{Co}$

A padronização absoluta do  $^{60}\text{Co}$  foi estabelecida apenas para o método pico-soma no detector tipo poço e no detector coaxial. Os valores de atividade bem como os valores de incertezas também se encontram listados nas tabelas a seguir:

**Tabela 6. 7: Valores de atividade pelo método pico-soma para o  $^{60}\text{Co}$**

Radionuclídeo $^{60}\text{Co}$	Atividade (kBq)	Incertezas		Atividade (kBq)	Incertezas	
	Método pico-soma (tipo poço)			Método pico-soma (d3)		
		$U_A\%$	$U_B\%$		$U_A\%$	$U_B\%$
<b>44S16</b>	4,421	0,03	0,23	4,343	0,03	0,23
<b>45S16</b>	3,578	0,04	0,23	3,539	0,04	0,23
<b>46S16</b>	2,975	0,04	0,23	2,929	0,04	0,23

Os resultados do  $^{60}\text{Co}$  atenderam às expectativas com boa precisão e exatidão. Por se tratar de um radionuclídeo de simples aplicação do método pico-soma, isto se refletiu nos resultados de maneira evidente. Abaixo, observam-se as tabelas com o balanço de incertezas para o  $^{60}\text{Co}$  para o método pico-soma.

**Tabela 6. 8: Incertezas para o método pico-soma para o  $^{60}\text{Co}$**

Componentes de incerteza	A (%)	B (%)
<b>Tempo vivo</b>	-	0,01
<b>Pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	0,05
<b>Radiação de fundo</b>	-	0,02
<b>Decaimento</b>	-	0,01
<b>Estatística de contagem</b>	0,03	
<b>Incerteza Combinada (k = 1)</b>	0,23	

A fim de evidenciar a qualidade das medições para este radioisótopo, o gráfico abaixo foi feito em escala aumentada a fim de comprovar a coerência e a proximidade dos valores obtidos.

## 6.5 Padronização Absoluta do $^{54}\text{Mn}$

A padronização absoluta do  $^{54}\text{Mn}$  foi estabelecida para o método pico-soma no detector “d3”. Os valores de atividade bem como os valores de incertezas também se encontram listados nas tabelas a seguir:

**Tabela 6. 9: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o  $^{54}\text{Mn}$**

Radionuclídeo $^{54}\text{Mn}$	Atividade (kBq)	Incertezas		Atividade (kBq)	Incertezas	
	Método Curva de Eficiência			Método pico-soma		
		$U_A\%$	$U_B\%$		$U_A\%$	$U_B\%$
<b>17S16</b>	1,530	0,32	0,6	1,576	0,8	0,1
<b>18S16</b>	1,876	0,32	0,6	1,985	0,8	0,1
<b>19S16</b>	2,181	0,21	0,6	2,319	0,6	0,1
<b>20S16</b>	1,757	0,33	0,6	1,836	0,3	0,1
<b>21S16</b>	1,753	0,19	0,6	1,817	0,7	0,1

Os resultados obtidos para o  $^{54}\text{Mn}$  também foram obtidos com relativo sucesso quanto à precisão e exatidão esperados. É possível melhorar os resultados obtidos ajustando a estatística de contagem. A expectativa é que seja possível refazer as medidas e melhorar os resultados obtidos posteriormente.

**Tabela 6. 10: Incertezas para o método pico-soma para o  $^{54}\text{Mn}$**

Componentes de incerteza	A (%)	B (%)
<b>Tempo vivo</b>	-	0,01
<b>Pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	<0,1
<b>Radiação de fundo</b>	-	<0,1
<b>Decaimento</b>	-	<0,1
<b>Estatística de contagem</b>	0,82	
<b>Incerteza Combinada (k = 1)</b>		0,84
<b>Incerteza Expandida (k = 2)</b>		1,68

**Tabela 6. 11: Incertezas do método curva de eficiência para o  $^{54}\text{Mn}$**

Radionuclídeo	$^{54}\text{Mn}$	
	A (%)	B (%)
<b>Incertezas</b>		
<b>Estatística de contagem</b>	0,25	
<b>Curva de eficiência</b>	-	0,56
<b>Geometria de pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	< 0,1
<b>Tempo-vivo</b>	-	< 0,1
<b>Probabilidade de emissão gama (<math>P_\gamma</math>)</b>	-	0,05
<b>Incerteza relativa <math>u</math> (%)</b>	0,65	
<b>Incerteza expandida <math>U</math> (%) (<math>k=2</math>)</b>	1,3	

### 6.6 Padronização Absoluta do $^{121}\text{Te}$

Nesta etapa foi considerada a região dos raios X onde são localizados no espectro os picos devidos à  $K\alpha$  e  $K\beta$ , picos estes, devidos ao processo de captura eletrônica compreendidos no intervalo de (26 – 30 keV) e também os dois picos de radiação gama representados pelo 507 keV e 573 keV consequentes do processo de captura eletrônica. Podemos observar as tabelas com as respectivas medições no método relativo à curva de eficiência e do método pico-soma:

**Tabela 6. 12: Valores de atividade pelo método pico-soma e curva de eficiência para o  $^{121}\text{Te}$**

Radionuclídeo $^{54}\text{Mn}$	Atividade (kBq)	Incertezas		Atividade (kBq)	Incertezas	
		Método Curva de Eficiência			Método pico-soma	
		$U_A\%$	$U_B\%$		$U_A\%$	$U_B\%$
<b>172S14</b>	695,0	0,50	2,10	696,4	0,50	0,1
<b>173S14</b>	560,0	0,59	2,10	570,0	0,30	0,1
<b>174S14</b>	600,0	0,39	2,10	599,0	0,15	0,1
<b>175S14</b>	689,0	0,27	2,10	604,7	0,35	0,1
<b>176S14</b>	600,0	0,47	2,10	596,5	0,36	0,1

Pode-se observar o resultado obtido para os dois métodos onde há a concordância dos resultados quando observados o valor fonte a fonte. A maior diferença ocorre para a fonte 175S14 onde a medição apresenta maior discrepância entre os dois métodos.

Considerando o método absoluto de Padronização, as incertezas relacionadas ao método são extremamente baixas uma vez que os dados que compuseram as incertezas finais fornecem incertezas são provenientes de espectros longos com estatística de pequena dispersão. É um método que demonstra robustez e dados confiáveis em relação ao método relativo da Curva de Eficiência.

## Capítulo 7

### CONCLUSÕES

Foi possível verificar as condições de validade da abordagem teórica apresentada, bem como demonstrar matematicamente que não há restrições de percentual igual a 100% para qualquer radiação gama emitida por um radionuclídeo.

Foi possível realizar o estudo de estabilidade dos sistemas a partir da calibração em energia e através da composição de curvas de eficiência bem ajustadas. Inicialmente, considerando a primeira padronização absoluta realizada para o  $^{121}\text{Te}$ , foi possível obter uma excelente precisão de medida da grandeza atividade com valores de incerteza estabelecidos em torno de 1% para  $k = 2$  considerando o método pico-soma. O  $^{60}\text{Co}$  também pode ser padronizado absolutamente com a mesma precisão obtida com dispersão dos valores em torno de 1%.

Foi possível estabelecer as curvas de eficiência para os três sistemas de espectrometria utilizados. O uso das curvas na determinação da grandeza atividade como método relativo atendeu ao objetivo estabelecido mediante os resultados apresentados e discutidos. Apesar de as incertezas associadas ao método relativo tenham maior dispersão em relação ao método pico-soma, o método é uma fonte segura para comparação a quaisquer outros métodos.

Outra contribuição deste trabalho foi a consideração do problema de correlação angular. O trabalho original do Brinkman não aborda o problema com clareza, exceto para as radiações de aniquilação elétron-pósitron, cujo problema se mostrou pouco importante. Foi considerada a correção para correlação angular do  $^{60}\text{Co}$ , cujo valor comprovou a pouca influência deste parâmetro.

As padronizações absolutas do  $^{22}\text{Na}$  e  $^{54}\text{Mn}$  demonstraram valores de atividade para ambos os métodos com percentuais de diferença de 3 a 7% entre si. Estes valores revelam instabilidades nos sistemas de detecção por conta de constantes falhas na refrigeração por nitrogênio líquido.

A padronização absoluta do  $^{65}\text{Zn}$  ficou completamente imprecisa visto que o sistema de medição se deteriorou, o que levou ao desligamento de dois dos detectores utilizados na pesquisa devido a falta do abastecimento com nitrogênio líquido. Mesmo sendo um resultado desfavorável, serve como referência para percepção de falhas e instabilidade no sistema.

O método relativo da curva de eficiência é acreditado e adequado para comparações com métodos absolutos uma vez que ela é composta de dados provenientes de padrões radionuclídicos diversos, conforme pode ser confirmado a partir da comparação com o método pico-soma.

Foi possível comparar e analisar criticamente cada metodologia empregada nas padronizações realizadas até o momento.

## **Capítulo 8**

### **CONSIDERAÇÕES FINAIS**

A aplicação do método pico-soma para emissores X e gama simultâneos se mostra extremamente simples e produz resultados com excelente precisão, desde que a estatística de contagem seja bem estabelecida. O uso do detector de HPGe possibilita a obtenção de espectros com excelente resolução de picos de energia, pois permite a separação de picos muito próximos e facilita a demarcação das áreas que são usadas para determinar a grandeza atividade. Este método é ideal para isótopos que decaem por captura eletrônica seguidos de radiação gama.

Um questionamento levantado pelo pesquisador Takeshi Kodama a respeito do  $^{88}\text{Y}$ , um emissor  $\beta^-$  que decai para o nível de 2700 keV do núcleo filho e que emite duas radiações gama subsequentes de 1800 keV e 900 keV para o estado fundamental paralelamente a uma emissão direta de intensidade 6% e energia 2700 keV, questiona se para este radioisótopo o método pico-soma é válido já que este não decai com 100% apenas pela cascata dos gamas. A resposta a este questionamento está em discussão e será apresentada num momento oportuno.

Como sugestão de trabalho futuro a padronização do  $^{111}\text{In}$  é interessante pois serve como comprovação do método pico-soma para três radiações gama em coincidência além de servir como parâmetro para estudos em medicina nuclear.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ABNT/INMETRO, 2003. “Guia para a expressão de incertezas de medição”, 3ed. brasileira, ABNT, INMETRO, SBM, Rio de Janeiro.
- ALBERTAZZI, A., SOUSA, A., 2008, “Fundamentos de Metrologia Científica e Industrial” São Paulo, 1ed, Manole.
- ALMEIDA, M. C. M., IWAHARA, A., POLEDNA, R. 2007, “Absolute disintegration rate and 320 keV  $\gamma$ -ray emission probability of  $^{51}\text{Cr}$ ”, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A, v. 580, pp. 165-168.
- ANDREOTTI, E., HULT, M., MARISSSENS, G. et al., 2014, “Determination of dead-layer variation in HPGe detectors” Appl. Radiat. and Isotopes, vol. 87, pp. 331-335.
- 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  $^{123}\text{I}$ .”, Appl. Radiat. and Isotopes, v. 109, pp. 389-392.
- ASHE J. B and McCRARY J. H., 1960, “Method for determining the photopeak efficiency of scintillation counters”, Review of Scientific Instruments, vol. 32, pp. 205-206.
- BENCHIMOL A., 1995, “Uma breve história da eletrônica” 1 ed., Interciência.
- BRINKMAN, G. A., ATEN, A. H. W., VEENBOER, Jr. and J., 1963, “Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal-I - Calibration by Means of a Single Nuclide”, Appl. Radiat. and Isotopes, vol. 14, pp. 153-157.
- CAPOGNI, M., CECCATELLI, A., DE FELICE P. et al., 2006. “Random-summing correction and pile-up rejection in the sum-peak method”, Appl. Radiat. and Isotopes, v. 64, pp. 1229-1233.

- CAPUANO, F. G., MARINO M. A. M., 2006. “Laboratório de Eletricidade e Eletrônica”, 22ed, Érica, São Paulo.
- CARUSO, F. 2006. “Física Moderna: Origens Clássicas e fundamentos Quânticos.”, 2ed, Elsevier, Rio de Janeiro.
- CAZALA, C., REYSS, J., DECOSSAS, J L AND ROYER, A., 2003, “Improvement in the Determination of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{228-234}\text{Th}$ ,  $^{226-228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^7\text{Be}$  by  $\gamma$  Spectrometry on Evaporated Fresh Water Samples” Environ. Sci. Technol. Vol. 32, pp. 4990-4993.
- 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  $^{203}\text{Hg}$ ”, Appl. Radiat. and Isotopes, v. 64, pp. 1440-1445.
- DDEP, 2004-2018. DDEP Monographie BIPM.5 – Table of Radionuclides [www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEP\\_data.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEP_data.htm)
- DELGADO, J. U., 2000. “Probabilidades de emissão X e Gama determinadas por espectrometria em regiões complexas. Rio de Janeiro., COPPE-UFRJ.
- DE OLIVEIRA, E. M., IWAHARA, A., POLEDNA, R. et al., 2012. “Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of  $^{22}\text{Na}$ ”, Nucl. Instr. and Meth. in Pyhs. Res. A, v. 687, pp. 69-74.
- DEBERTIN, K. AND HELMER, R., G., 1988, “Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors” Amsterdam: North Holland.
- DIAS, J. L. M., 1998 “Medida, normalização e qualidade: aspectos históricos da Metrologia no Brasil” 1ed. Fundação Getúlio Vargas.

- DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., 1995, "Accidental Summing Corrections in 125I Activity Determination by the Sum-Peak Method", *Appl. Radiat. and Isotopes*, v. 46, pp. 945-948.
- DIETER W. and OTT S., 1958, "Eine einfache methode zur bestimmung der ansprehwahrscheinlichkeit eines NaJ-Lochkristalls" *Zeitschrift fur Physik*, vol. 154, pp. 294-300.
- EG&G ORTEC, 1984, "Experiments in Nuclear Science: AN34 Laboratory Manual" 3ed., U.S.A: EG&G ORTEC.
- FRECK, D. W. and WAKEFIELD, J., 1962, "Gamma-Ray Spectrum obtained with a Lithium-drifted p-i-n Junction in Germanium" *Nature* vol. 4816 pp. 669.
- GILMORE, G. AND HEMINGWAY, J., D., 1995, "Practical Gamma-Ray Spectrometry" New York: Wiley.
- GUPTA, R. K., JHA, S., 1955 "Studies with the scintillations spectrometer" *Nuclear Physics*, vol. 1, pp. 1-8.
- GURRIARAN, R., BARKER, E., BOUISEET, P. et al., 2004, "Calibration of a very large ultra-low background well-type Ge detector for environmental sample measurements in an underground laboratory" *Nucl. Instrum. Methods A*, vol. 524, pp. 264-272.
- HALL, R. N. AND SOLTYS, T. J., 1971, "High purity germanium for detector fabrication" *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. NS-18, pp. 160-165.
- HULT, M., 2006, "Underground Gamma-Ray Spectrometry" *Acta Chim. Slov.*, vol. 53, pp. 1-7.
- HULT, M., 2007, "Low-level gamma-ray spectrometry using Ge detectors" *Metrologia*, vol. 44, pp. S87-S89.

- INMETRO, 2012 “Vocabulário internacional de Metrologia: conceitos fundamentais e gerais dos termos associados (VIM 2012). “Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO) 1ed. brasileira. Rio de Janeiro.
- ISO GUM “Guia para Expressão de Incerteza de Medição – Avaliação de Dados de Medição” 1a Edição Brasileira da 1a Edição do BIPM de 2012 – Rio de Janeiro - 2012
- 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.”, Appl. Radiat. and Isotopes, v. 58, pp. 227-233.
- KNOLL, G. F., 1989, “Radiation Detection and Measurement”, 2ed. Hoboken, John Wiley & Sons.
- L’ANNUZIATA, M. F., 1998. “Handbook of Radioactivity Analysis” 3ed., San Diego CA: Academic Press.
- LLACER, J., 1972, “Planar and coaxial high purity germanium radiation detectors” Nucl. Instrum. Methods, vol. 98, pp. 259-268.
- MALONDA, A. G., 1995, “Modelos de Parâmetro Livre em Centello Líquido”. Editorial CIEMAT, Madrid.
- MANN, W. B., RYTZ, A., SPERNOL, A., 1991, “Radioactivity measurements principle and practice” 1ed., Pergamon Press.
- ODERKERK R. P., and BRINKMAN G. A., 1990, “The applicability of the Sum-peak formula to extended sources” Appl. Radiat. and Isotopes, vol. 41, nº 2, pp. 169-171.

- OGATA Y., MIYAHARA H., ISHIHARA M., et al., 2016, “Development of the modified sum-peak method and its application” Appl. Radiat. and Isotopes, vol. 109, pp. 354-357.
- PELL, E. M., 1960 “Ion Drift in an n-p Junction” J. Appl. Phys., vol. 31, pp. 291-302.
- POLEDNA R., 1988 “Determination of activity concentration of  $^{125}\text{I}$  solution by (X gamma) coincidence counting and an Efficiency Extrapolation Curve” Nucl. Instrum. Methods A, vol. 286, pp. 370-374.
- PT02C-004 Preparação de fontes radioativas padronizadas. SUITE SE, IRD/CNEN, 2018.
- PT02C-007 Calibração de fontes radioativas emissoras gama com detector de germânio. SUITE SE, IRD/CNEN, 2018.
- ROTETA M., GARCIA-TORANO E., 1998, “Determination of Multipolarities and Mixing Ratios of Some  $\gamma$  Transitions following  $^{125}\text{Sb}$  Decay by  $\gamma$ - $\gamma$  Angular Correlation” Appl. Radiat. and Isotopes, vol. 49, , pp. 1349.
- SANGSINGKEOW, P., BERRY, K. D., DUMAS, E. J. et al., 2003, “Advances in germanium detector technology” Nucl. Instrum. Methods A, vol. 505, pp. 183-186.
- SANTANA, R. G., 2014, “*Metrologia*”, 1ed LT, Curitiba.
- SHAPIRO, P., HIGGS, R. W. 1957, “NaI Summing Spectrometer” The Review of Scientific Instruments, vol. 28, pp. 939-941.
- SIEGBAHN K., 1965, “Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectrometry”, vol. 1 e 2, North Holland Publishing Co., Amsterdam.

- SUTHERLAND L. G, and BUCHANAN J., “Error in the absolute determination of disintegration rates of extended sources by coincidence counting with a single detector – application to I-125 and Co-60.” *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 18, pp. 786-787, Pergamon Press Ltda., Printed in Northern Ireland.
- TAVENDALE, A. J. and EWAN, G. T., 1963, “A high resolution lithium-drift germanium gamma-ray spectrometer” *Nucl. Instrum. Methods* vol. 25, pp. 185-187.
- VIDMAR, T., KOSSERT, K., NÄHLE, O.J. et al., 2009. “Application of the sum-peak method to activity standardizations of extended <sup>60</sup>Co sources”, *Appl. Radiat. and Isotopes*, v. 67, pp. 160-163.
- VIM 2012 “Vocabulário Internacional de Metrologia: conceitos fundamentais e gerais e termos associados”, Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO), 1.ed. brasileira. Rio de Janeiro. 2012
- WANG, Z., ZHANG, X., CHANG, Y., 2001. “The determination of <sup>125</sup>I activity using sum-peak method with a well-type HPGe-detector-based spectrometer”, *Nucl. Instr. and Meth. in Pyhs. Res. A*, v. 459, pp. 475-481.

# ANEXO A – Artigo original “Absolute Standardization with a NaI (Tl) Crystal – I”

International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1963, Vol. 14, pp. 153–157. Pergamon Press Ltd. Printed in Northern Ireland

## Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal—I

### Calibration by Means of a Single Nuclide

G. A. BRINKMAN, A. H. W. ATEN, JR. and J. TH. VEENBOER  
Institute for Nuclear Physics Research, Amsterdam, Holland

(Received 13 July 1962)

The absolute standardization of radioisotopes, emitting two  $\gamma$ -rays in coincidence, is possible by means of a NaI(Tl) crystal spectrometer. For the absolute activity ( $N$ ) of such a radioisotope, the following relation can be derived:

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T.$$

$A_1$  and  $A_2$  are the areas under the photopeaks of  $\gamma_1$ , and  $\gamma_2$ , respectively,  $A_{12}$  is the area under the sum-peak and  $T$  the area under the whole spectrum. The method is tested with  $\text{Co}^{60}$  and  $\text{Sc}^{46}$ .

#### NORMALIZATION ABSOLUE AVEC UN CRISTAL DE NaI (Tl)—I. ETALONNAGE AVEC UN SEUL NUCLEIDE

La normalisation absolue des radioisotopes qui émettent deux rayons  $\gamma$  en coïncidence peut se faire au moyen d'un spectromètre à cristal de NaI(Tl). Pour l'activité absolue d'un tel radioisotope on peut déduire la formule suivante:

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T.$$

$A_1$  et  $A_2$  sont les aires sous les photo-pics de  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$ ,  $A_{12}$  est l'aire sous le pic-total et  $T$  l'aire sous le spectre entier. On fait épreuve de la méthode au moyen du  $\text{Co}^{60}$  et du  $\text{Sc}^{46}$ .

#### АБСОЛЮТНАЯ СТАНДАРТИЗАЦИЯ ПОСРЕДСТВОМ NaI(Tl) КРИСТАЛЛА—I.

##### Калибрация посредством одиночного нуклида

Абсолютная стандартизация радиоизотопов, испускающих два совпадающих  $\gamma$  луча, возможна посредством спектрометра с кристаллом NaI(Tl). Для определения абсолютной активности ( $N$ ) такого радиоизотопа может быть выведено следующее уравнение:

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T.$$

где  $A_1$  и  $A_2$  представляют, соответственно, площади под максимумами фотолиний лучей  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$ ,  $A_{12}$  площадь под суммарным максимумом и  $T$  площадь под всем спектром. Этот метод был проверен на  $\text{Co}^{60}$  и  $\text{Sc}^{46}$ .

#### ABSOLUTE NORMUNG MITTELS EINEM Na(Tl) KRISTALLS—I. NORMUNG MITTELS EINES EINZIGEN NUKLIDS

Die absolute Normung von Radioisotopen welche zwei sich überdeckende  $\gamma$ -Strahlen emittieren ist mittels eines NaI(Tl) Krystalspektrometers möglich. Die absolute Aktivität ( $N$ ) eines solchen Radioisotopes kann wie folgt ausgedrückt werden:

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T.$$

$A_1$  und  $A_2$  sind die Flächen unter den Gipfeln der  $\gamma_1$  und  $\gamma_2$  Photolinien,  $A_{12}$  ist die Fläche unter dem summierten Gipfel und  $T$  die Fläche unter dem gesamten Spektrum. Die Methode wurde mittels  $\text{Co}^{60}$  und  $\text{Sc}^{46}$  geprüft.

### INTRODUCTION

GUPTA and JHA<sup>(1)</sup> have proved that the efficiency for photoelectric absorption for isotopes emitting two  $\gamma$ -rays in coincidence can be obtained from the spectrum. However, in their calculation it is necessary to determine from the scintillogram the number of coincidences between the photoelectric absorption of one  $\gamma$ -ray and the Compton absorption of the other. SHAPIRO and HIGGS<sup>(2)</sup> determined besides the efficiency for photoelectric absorption, the absolute activity of the isotope. For their method, it is necessary to find the photofraction (this is the fraction of the total number of captured  $\gamma$ -rays which are captured by a photoelectric process). This photofraction has to be measured by means of isotopes emitting only one  $\gamma$ -ray.

SCHMIDT-OTTO<sup>(3)</sup> could calculate the efficiency for photoelectric absorption and the absolute activity directly from the spectrum, without the use of isotopes emitting only one  $\gamma$ -ray. However, that method can only be used if the energies of the two coincident  $\gamma$ -rays are about equal (e.g. Sc<sup>46</sup>, Co<sup>60</sup> and pure  $\beta^+$ -emitters). ASHE and McCRARY<sup>(4)</sup> gave a very simple formula, but their method can only be used if the energies of both  $\gamma$ -rays are close together. Furthermore, it is by no means certain that the validity of the approximation they make in their calculations (the neglect of Compton-Compton coincidences) is sufficiently general.

In this article it will be proved that the absolute activity of an isotope emitting two  $\gamma$ -rays in coincidence can be calculated from the areas of both photopeaks, the area of the sum-peak, and an extrapolation of the total count-rate to zero discrimination. It is not necessary for the two  $\gamma$ -energies to be approximately equal, or for both  $\gamma$ -rays to occur for 100 per cent of the disintegrations as they do in  $\beta^+$ -emitters, Na<sup>24</sup>, Sc<sup>46</sup>, Co<sup>60</sup> and Y<sup>88</sup>.

Measurements with nuclides other than the one calibrated are not required. We also derived a formula for the case of three coincident  $\gamma$ -rays (e.g. Na<sup>22</sup>, Sc<sup>48</sup>).

### THEORY

(a) The areas  $A_1$  and  $A_2$  respectively, under the photopeaks of an isotope emitting two

$\gamma$ -rays in coincidence are given by

$$A_1 = Ne_1(1 - t_2) \quad (1)$$

$$A_2 = Ne_2(1 - t_1) \quad (2)$$

where  $N$  is the absolute activity,  $e_1$  and  $e_2$  are the efficiencies for photoelectric absorption (including contributions to the photopeak due to a Compton process or a pair-formation combined with complete absorption of the secondary photon or photons or of both the annihilation rays) and  $t_1$  and  $t_2$  are the total efficiencies for the total absorption (photoelectric and Compton absorption and pair-formation) of  $\gamma_1$  and  $\gamma_2$ .

The area under the photopeak  $A_{12}$  is given by

$$A_{12} = Ne_1e_2. \quad (3)$$

Combining these three formulae gives

$$\frac{A_1A_2}{A_{12}} = N(1 - t_1)(1 - t_2). \quad (4)$$

The total area under the whole spectrum,  $T$  (including photopeaks, sum-peak, Compton area etc.), is given by

$$T = N(t_1 + t_2 - t_1t_2). \quad (5)$$

From equations (4) and (5) it follows that

$$\frac{A_1A_2}{A_{12}} + T = N. \quad (6)$$

This formula can also be derived from formula (13) of SHAPIRO and HIGGS<sup>(2)</sup> work. The difference between their procedure and ours is that the ratio  $e:t$  has been calculated by SHAPIRO and HIGGS by means of isotopes emitting only one  $\gamma$ -ray, whereas in our method the corresponding information is obtained from the spectrum of the isotope which is calibrated.

(b) If  $\gamma_1$  occurs in a fraction  $p$  (e.g. as consequence of internal conversion) and  $\gamma_2$  for 100 per cent of the disintegrations, we derive:

$$A_1 = Npe_1(1 - t_2)$$

$$A_2 = N\{pe_2(1 - t_1) + (1 - p)e_2\}$$

$$A_{12} = Npe_1e_2$$

$$\frac{A_1A_2}{A_{12}} = N(1 - pt_1)(1 - t_2)$$

$$T = N(pt_1 + t_2 - pt_1t_2)$$

$$\frac{A_1A_2}{A_{12}} + T = N.$$

The final formula is the same as in the case of  $p = 1$ . This formula is also valid for isotopes emitting only  $\beta^+$ -particles (and no  $\gamma$ -rays).

(c) For isotopes emitting three  $\gamma$ -rays in coincidence, all three in 100 per cent of the disintegrations (e.g.  $\beta^+$  and one  $\gamma$ -ray), the following formulae can be derived ( $A_{12}$  is the area under the sum-peak of  $\gamma_1$  and  $\gamma_2$ ,  $A_{123}$  the area under the triple sum-peak):

$$A_1 = Ne_1(1 - t_2)(1 - t_3)$$

$$A_2 = Ne_2(1 - t_1)(1 - t_3)$$

$$A_3 = Ne_3(1 - t_1)(1 - t_2)$$

$$A_{12} = Ne_1e_2(1 - t_3)$$

$$A_{23} = Ne_2e_3(1 - t_1)$$

$$A_{13} = Ne_1e_3(1 - t_2)$$

$$A_{123} = Ne_1e_2e_3$$

$$R = \frac{A_1A_2}{A_{12}} = \frac{A_2A_3}{A_{23}} = \frac{A_1A_3}{A_{13}} = \frac{A_{12}A_{23}A_{13}}{(A_{123})^2}$$

$$= N(1 - t_1)(1 - t_2)(1 - t_3).$$

$$T = N(t_1 + t_2 + t_3 - t_1t_2 - t_2t_3 - t_1t_3 + t_1t_2t_3)$$

$$= N\{1 - (1 - t_1)(1 - t_2)(1 - t_3)\}.$$

In this case again we find

$$R + T = N.$$

$R$  can be obtained from four different expressions.

In  $\text{Na}^{22}$ , the  $\beta^+$ -decay accounts for only 90 per cent of the disintegrations, and therefore  $\gamma_1$  and  $\gamma_2$  occur with a frequency of 0.9 of that of the 1.277 MeV  $\gamma$ -ray. Suppose that  $\gamma_1$  and  $\gamma_2$  occur for a fraction  $p$ , and  $\gamma_3$  for 100 per cent:

$$R = \frac{A_2A_3}{A_{23}} = \frac{A_1A_3}{A_{13}}$$

$$= Np(1 - t_1)(1 - t_2)(1 - t_3)$$

$$+ N(1 - p)(1 - t_3)$$

$$R' = \frac{A_1A_2}{A_{12}} = \frac{A_{12}A_{23}A_{13}}{(A_{123})^2}$$

$$= Np(1 - t_1)(1 - t_2)(1 - t_3)$$

$$T = Np\{1 - (1 - t_1)(1 - t_2)(1 - t_3)\}$$

$$+ N(1 - p)t_3.$$

$$R + T = N$$

$$R' + T = Np + N(1 - p)t_3.$$

The  $\text{Na}^{22}$  spectrum will show five peaks. To simplify this, it is better to place the source

directly on the crystal ( $2\pi$  geometry), so that it is not possible that two coincident 0.511 MeV rays both hit off the crystal. In this geometry one is dealing with case (b): two  $\gamma$ -rays from which one occurs in a fraction  $p$  of all decays.

### ANGULAR CORRELATION

Evidently, if the solid angle, which the crystal subtends at the source, is  $< 2\pi$ , there will not be any sum-peak for  $\beta^+$ -emitters and the method cannot be used. If there exists some angular correlation between the two  $\gamma$ -rays (e.g.  $\text{Sc}^{46}$ ,  $\text{Co}^{60}$ ,  $\beta^+$ -emitters), the formulae given above are not exact. Standardization of a  $\beta^+$ -emitter by the method given above is, of course, only possible inside the well of a well-type crystal. In this case the solid angle may not differ much from  $4\pi$ , as here the angular correlation is extremely important.

A correction for angular correlation, if  $\Omega < 4\pi$ , is very difficult to calculate. For our experiments (see below) we only made use of  $\text{Sc}^{46}$  and  $\text{Co}^{60}$ , for which the angular correlation affects the accuracy of our method only to a minor degree. The correction for our arrangement and for these isotopes is  $< 1$  per cent, a correction smaller than the standard deviation. Therefore we neglected this correction.

No correction is needed if the solid angle is  $2\pi$  (e.g. the sample placed directly on the flat surface of the crystal), on account of the symmetric properties of angular correlation between  $\gamma$ -rays. A method to calibrate  $\beta^+$ -emitters, with correction rules for the angular correlation will be published in the near future.

### EXPERIMENTAL RESULTS

The activity of the  $\text{Sc}^{46}$  solution was measured by means of a  $4\pi\beta$ (plastic scintillator)- $\gamma$  coincidence method<sup>(5)</sup> and was found to be

$$4.02 \pm 0.04 \mu\text{c/g.}$$

The activity of the  $\text{Co}^{60}$  solution was measured in two ways:

$4\pi\beta$ (plastic scintillator)- $\gamma$  coincidence:

$$2.40 \pm 0.02 \mu\text{c/g.}$$

$4\pi\beta$ (filter paper)- $\gamma$  coincidence:

$$2.38 \pm 0.02 \mu\text{c/g.}$$

$$\text{Average: } 2.39 \pm 0.02 \mu\text{c/g.}$$

From  $\text{Sc}^{46}$  one source was prepared, 9.85 mg,

and from  $\text{Co}^{60}$  also one source was prepared, 9.22 mg. The measurements were done with a Quartz et Silice  $60 \times 60$  mm NaI(Tl) well-type crystal, diameter of well: 17 mm, depth of well: 38 mm. The sources were placed in three positions: (1) at the bottom of the well, (2) in the centre of the well, and (3) at the top of the well ( $2\pi$  geometry).

A fourth experiment was carried out by placing the sources directly on a  $5 \times 5$  in. crystal. The resolution of this crystal was very bad, the two peaks of  $\text{Co}^{60}$  could not be separated. For  $A_1A_2$  we took the square of half the area of this double peak.

All measurements were done in duplicate. A 100 channel RIDL pulse-height analyser was used for the measurement of  $A_1$ ,  $A_2$  and  $A_{12}$ . The total area ( $T$ ) was measured by using one discriminator.<sup>(5,6)</sup>

#### DETERMINATION OF $A_1$ , $A_2$ , $A_{12}$ AND $T$

$A_1$ ,  $A_2$  and  $A_{12}$  are measured by integration of the areas under the peaks. As can be seen from Table 1, there are very large deviations between the duplicate measurements of  $A_1A_2/A_{12}$  (up to about 20 per cent), due to the fact that it is very difficult to measure these areas with a high degree of accuracy. If the efficiency is high (inside the well of a large crystal), the term  $A_1A_2/A_{12}$  will be small in respect to  $T$ . This is, of course, the most favourable case, if at least the value of  $T$  can be measured with a good precision. In our experiments this is the case, as can be seen from the tables. The deviation between two duplicate measurements of  $T$  is much smaller (on the average 3 per cent) than between the measurements of  $A_1A_2/A_{12}$  (on the average 17 per cent).  $T$  can be found by the integration of the area under the whole

TABLE 1.  $\text{Sc}^{46}$ 

Position of source	$A_1$	$A_2$	$A_{12}$	$\frac{A_1A_2}{A_{12}}$	$T$	$\frac{A_1A_2}{A_{12}} + T$	$N$ ( $\mu\text{c/g}$ )
1	8440	5244	1192	37130	56484	93614	4.28
1	7592	5338	1346	30109	56484	86593	3.96
2	6305	4029	475	53435	44904	98339	4.50
2	6877	4442	590	51776	43952	95728	4.38
3	2719	2036	88.5	62552	20980	83532	3.82
3	3586	2152	101.8	75806	20887	96693	4.43
4	9776	9211	1965	45825	51118	96943	4.43
4	9377	8882	2227	37399	50646	88045	4.03
Average:				$4.23 \pm 0.09 \mu\text{c/g}$			
Calibrated by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ :				$4.02 \pm 0.04 \mu\text{c/g}$			

TABLE 2.  $\text{Co}^{60}$ 

Position of source	$A_1$	$A_2$	$A_{12}$	$\frac{A_1A_2}{A_{12}}$	$T$	$\frac{A_1A_2}{A_{12}} + T$	$N$ ( $\mu\text{c/g}$ )
1	2823	2553	380	18966	28420	47386	2.31
1	2927	2497	439	16649	29979	46628	2.28
2	1999	1894	187	20247	21866	42113	2.06
2	2627	2230	214	27375	23480	50835	2.48
3	991	967	31.2	30715	10645	41360	2.02
3	1196	1058	33.5	37772	11301	49073	2.40
4	4611	4611	872	24382	27609	51991	2.54
4	4213	4213	788	22525	27609	50134	2.45
Average:				$2.32 \pm 0.07 \mu\text{c/g}$			
Calibrated by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ :				$2.39 \pm 0.02 \mu\text{c/g}$			

spectrum. However, there are often deviations in the first channels and it seems to be better to calculate the contribution of these first channels by the extrapolation of the bias-curves.<sup>(5,6)</sup>

In Tables 1 and 2 the results are given for Sc<sup>46</sup> and Co<sup>60</sup>. All values have been corrected for decay. The numbers 1, 2 and 3 in the first column indicate the position of the source in the well (bottom, centre, top), number 4 indicates the upper surface of the 5 × 5 crystal. All values in the columns 2–7 are in counts per minute. Column 8 gives the activity of the solution as determined by these measurements. The deviations in the average values are the standard deviations from the mean.

### CONCLUSION

By means of a single crystal counter it is possible to measure the absolute activity of radioisotopes emitting two or three  $\gamma$ -rays in coincidence with an accuracy of  $\pm 5$  per cent. It is advisable to keep the term  $A_1 A_2 / A_{12}$  in the formula  $N = (A_1 A_2 / A_{12}) + T$  as small as possible, e.g. by placing the source inside the well of a large and narrow NaI(Tl) well-type crystal. To avoid angular correlation effects

with Sc<sup>46</sup> and Co<sup>60</sup>, it is advisable to place the source directly on top of the crystal ( $2\pi$  geometry), or to use a very narrow well. The advantage of this method is that no special instruments are necessary and that it can be carried out with only a  $\gamma$ -spectrometer. A method to measure the values of  $A_1$  and  $A_2$  more accurately is in study.

*Acknowledgment*—We wish to thank Dr. G. J. Nijgh for calculating some angular correlation corrections. This investigation is part of the programme of the Foundation for Fundamental Research of Matter (F.O.M.). It has been carried out with the financial support of the Netherlands Organization for Pure Scientific Research (Z.W.O.).

### REFERENCES

1. GUPTA R. K. and JHA S. *Nucl. Phys.* **1**, 2 (1956).
2. SHAPIRO P. and HIGGS R. W. *Rev. sci. Instrum.* **28**, 939 (1957).
3. SCHMIDT-OTTO W. D. *Z. Phys.* **154**, 294 (1959).
4. ASHE J. B. and MCCRARY J. H. *Rev. ci. Instrum.* **32**, 205 (1961).
5. BRINKMAN G. A. Thesis, University of Amsterdam (1961).
6. ATEN A. H. W. JR., BRINKMAN G. A. and VEENBOER J. TH. *Int. J. appl. Rad. Isotopes*. In press.

## **ANEXO B – Revisão histórica dos detectores**

### **B.1 Os detectores semicondutores de HPGe: Estado da arte**

A espectrometria de raios-gama usando detectores de Ge de alta pureza fez avanços significativos nos últimos anos porque cristais maiores e mais robustos tornaram-se disponíveis e a importância da composição dos materiais radiossensíveis na construção de detectores foi entendida pelos fabricantes. A combinação dessas melhorias permitiu reduzir os limiares de detecção em sistemas de espectrometria, o que foi de grande valia para medições especiais de contagem de baixo ruído (HULT, 2007). Este capítulo aborda o atual estado da arte da espectrometria de raios gama contemporânea, bem como fornece exemplos de novas aplicações de espectrometria de raios gama que foram possíveis devido aos avanços no desenvolvimento de novos detectores e na técnica de aplicação dos mesmos.

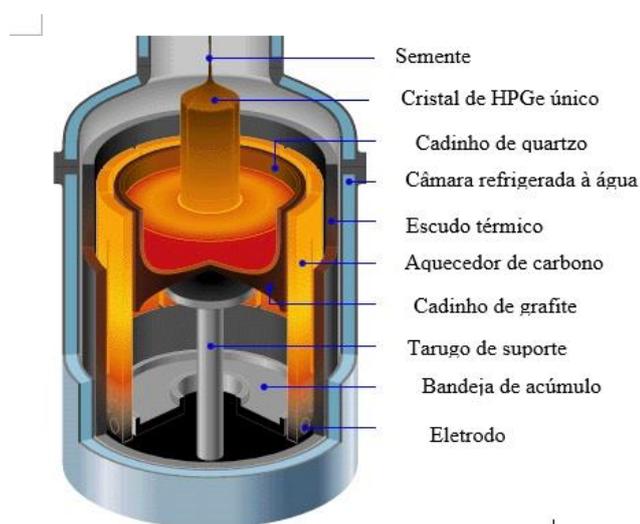
#### **B.1.1 Os detectores semicondutores de HPGe**

A espectrometria de raios gama pode ser realizada usando diferentes tipos de detectores de radiação. Esta breve revisão trata exclusivamente de detectores de germânio (Ge), em parte porque é fato que hoje em um laboratório de radioatividade de ponta, pode-se ter a certeza de encontrar detectores de Ge. Esses são instrumentos potentes capazes de serem usados tanto para rotina rápida de medições quanto medidas altamente especializadas (HULT, 2006).

Os detectores de Ge combinam alta resolução com baixo nível de ruído de extensão não realizável se o compararmos a um iodeto de sódio ativado com tálio (NaI), apesar de este ser amplamente empregado na espectrometria gama com relativo sucesso dependendo do radionuclídeo que se deseja medir (HULT, 2007). Não cabe aqui falar extensamente sobre os princípios de funcionamento fundamentais dos detectores Ge. Felizmente, sua operação está documentada em excelentes catálogos dos fabricantes, sites especializados, bem como livros (DEBERTIN, 1988, KNOLL, 1989, GILMORE, 1995, L'ANNUZIATA, 2004, ORTEC, 1984). No capítulo IV será feita uma descrição dos principais elementos que devam ser considerados para as medições que serão apresentadas nos capítulos posteriores.

O processo da deriva de lítio necessário para produzir o primeiro detector de Ge foi descrito pela primeira vez por PELL em 1960 (PELL, 1960). Já em 1962, FRECK e WAKEFIELD (FRECK, 1962) publicaram o primeiro espectro  $\gamma$  obtido a partir da

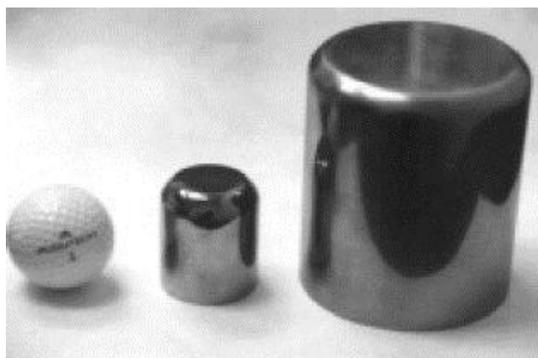
deriva do lítio e um Ge-diodo. O detector era pequeno (com um volume sensível de  $0,15 \text{ cm}^3 \times 0,75 \text{ cm}^3$ ) com baixa resolução (3% a 662 keV). Um ano depois, TAVENDALE e EWAN (TAVENDALE, 1963) apresentaram um detector Ge(Li) com significativa resolução: (0,45% ou 6 keV a 1332 keV), o que rendeu aos detectores de Ge uma vantagem sobre os de NaI. A deriva do lítio permitiu a exclusão de impurezas aceitáveis de tipo “p” em todo o cristal. Nos primeiros anos de produção dos detectores de Ge, esse procedimento foi necessário, uma vez que a pureza intrínseca dos cristais de Ge não era suficientemente alta. (HULT, 2006). O passo mais crucial na fabricação e na purificação de detectores de Ge é a tração do cristal a usando a técnica de Czochralski<sup>12</sup>.



**Figura B. 1: Técnica de Czochralski e seus componentes**

Em 1971, HALL e SOLTYS (HALL, 1971) descreveram a produção de detectores de Ge de alta pureza em que foi possível reduzir a concentração de impurezas eletricamente ativas até  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Um ano depois, Llacer publicou os primeiros espectros de raios  $\gamma$  de um detector de Ge de alta pureza (HPGe) (LLACER, 1972). Outras melhorias na técnica de Czochralski permitiu um controle maior das impurezas dentro dos cristais e possibilitou aumentar seu tamanho. Hoje é possível obter cristais de HPGe que possuam 10 cm de diâmetro, entretanto, é difícil obter um produto final de consistente qualidade, se o cristal for superior a 8 cm de diâmetro (HULT, 2006).

<sup>12</sup> O processo de Czochralski é um método de crescimento (estiramento) de cristais utilizado para obter cristais semicondutores únicos (por exemplo: silício, germânio e arsenieto de gálio). O processo é nomeado após o cientista polonês Jan Czochralski [1], que inventou o método em 1915 ao investigar as taxas de cristalização dos metais.



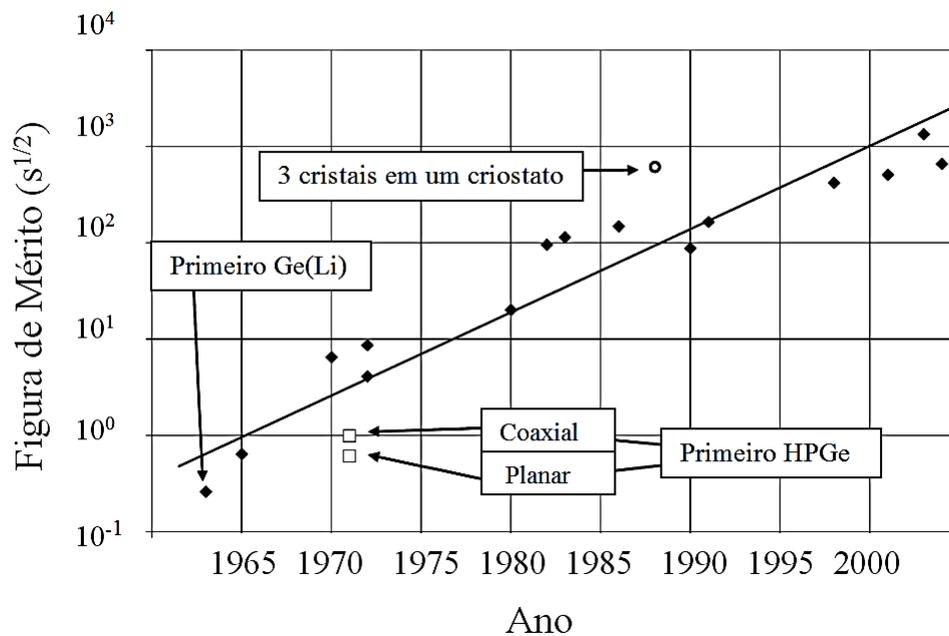
**Figura B. 2: Comparação entre os tamanhos de um cristal de HPGe com 15% e 150% de eficiência em relação a uma bola de golfe.**

Nenhum produtor faz rotineiramente cristais para detectores do tipo HPGe com diâmetros superiores a 8 cm (HULT, 2007). Os maiores detectores HPGe de um único cristal em operação hoje pesam quase 5 kg e possuem 10 cm de diâmetro por 12 cm de comprimento (CAZALA, 2003, GURRIARAN, 2004). O maior detector coaxial foi ligeiramente menos maciço e relatado por SANGSINKEOW et al. em 2005 (SANGSINGKEOW, 2005). Tais cristais grandes são tremendamente difíceis de produzir e os fabricantes precisam realizar muitas tentativas até conseguir produzir um cristal com propriedades eletrônicas aceitáveis (HULT, 2007). O uso e aplicabilidade deste tipo de detector ocorrem principalmente para medidas de baixo ruído ou “low background” cujo foco e abordagem não são as deste manuscrito.

A luta por detectores de volume maior para efetuar medições de baixo-ruído, naturalmente, foi impulsionada pelo fato de que só se podem atingir menores limiares de detecção por intermédio de detectores de alta eficiência (ANDREOTTI, 2014). Na literatura especializada que trata de detectores de tal porte há uma expressão matemática interessante que nos permite expressar graficamente a evolução dos detectores quanto à sua eficiência de detecção ao longo dos anos. Essa relação matemática estabelece as Figuras de Mérito (FoM) e é dada por:

$$F_oM = \frac{\varepsilon(E)}{\sqrt{R(E)B(E)}}$$

Onde  $\varepsilon(E)$  é a eficiência relativa (para uma fonte localizada à uma distância  $d = 25$  cm do detector),  $R(E)$  é a resolução (FWHM em keV) e  $B(E)$  é a taxa de contagens de background por keV (HULT, 2006). A figura a seguir mostra a evolução dos detectores ao longo dos anos em relação a figura de mérito que é um parâmetro utilizado nas medições com baixo ruído.



**Figura B. 3: Evolução dos detectores de Ge ao longo dos anos**

Essa evolução ao longo do tempo é uma das explicações para que os detectores de HPGe tenham se tornado poderosas ferramentas de trabalho dos laboratórios de radioatividade, particularmente em relação a medidas de baixa atividade. Além disso, os efeitos soma ocorrem em maior número considerando os cristais de tamanho maior. Portanto, não é sempre verdade que um detector maior oferece menores limites de detecção e conseqüentemente melhores medidas. Para raios gama de baixa energia, que no caso do Ge são fortemente atenuados, é de fato melhor usar um detector mais fino, e que também apresente uma melhor resolução (HULT, 2006). Para as medições realizadas nesta pesquisa, os sistemas compostos pelos cristais de HPGe são bastante adequados quanto ao que se deseja determinar em se tratando de baixos valores de atividade das fontes puntiformes.

## ANEXO C – Metrologia e suas bases

### C.1 Metrologia

O termo “metrologia” segundo definição que consta no VIM 2012, é tido como sendo a ciência das medições e suas aplicações. Etimologicamente a palavra metrologia vem do grego *metron* que significa medida, e *logos* que significa ciência (AURÉLIO, 2017) metrologia engloba todos os aspectos teóricos e práticos da medição, qualquer que seja a incerteza de medição e o campo de aplicação (SANTANA., 2012).

#### C.1.1 A Constituição do Sistema Metrológico Nacional e Internacional

A padronização internacional das medidas tem seu início na França em meados de 1790 durante a Revolução Francesa. O projeto denominado “Pesos e Medições” foi proposto em Assembleia Constituinte nesta mesma data e posteriormente aperfeiçoado por uma comissão composta por Lagrange, Lavoisier, Laplace e Borda, cuja proposta baseava-se na criação de um sistema universal de medidas com padrões de referência estabelecidos com base nos fenômenos da natureza (ALBERTAZZI, 2008, TAUHATA, 2014).

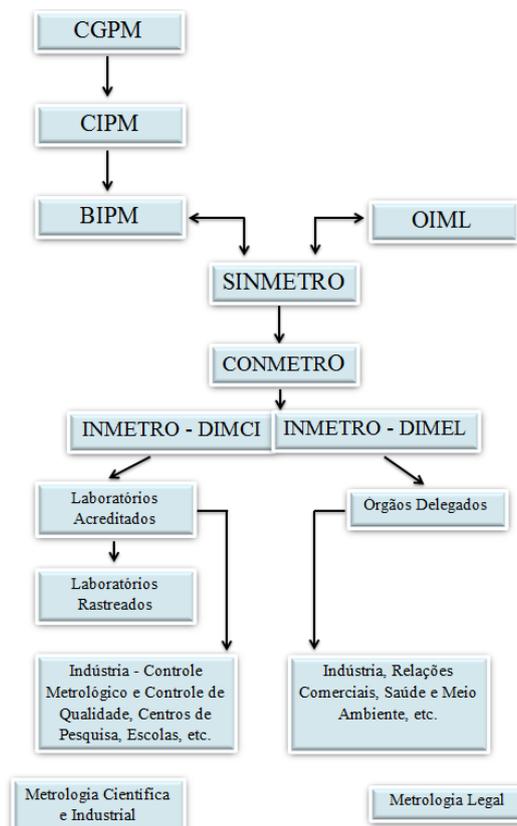
Em 1798, a França em convite formal solicitou a participação das nações aliadas e neutras na determinação dos padrões definitivos. Dentre os países que acataram a solicitação estão: Dinamarca, República Batava (atual Holanda), República Helvética (Suíça), Sardenha, Toscana, República Liguriana, República Cisalpina, República Romana e Espanha. Em junho do mesmo ano foram aprovados os protótipos dos padrões de Metro e Quilograma confeccionados em platina que estão sobre guarda do Arquivo da República da França (SANTANA, 2012).

Em 1869, a França propôs a reunião de uma Comissão Internacional sobre Medidas. A Comissão Internacional do Metro foi constituída e se reuniu em 1870 e 1872, com a participação de vinte e oito países. Em 20 de maio de 1875, os representantes dos 17 Estados, dentre eles o Brasil, assinaram a “Convenção do Metro”. Essa Convenção criava um conjunto de organismos responsáveis por assegurar a uniformidade nas medições das grandezas físicas no mundo (DIAS, 1988):

- O **Bureau Internacional de Pesos e Medidas (BIPM)**, laboratório permanente de metrologia, instalado nos arredores de Paris;

- O **Comitê Internacional de Pesos e Medidas (CIPM)**, com a função de controlar o BIPM e preparar a tomada de decisões e recomendações.
- **Conferência Geral de Pesos e Medidas (CGPM)**, instância que se reúne em Paris a cada quatro anos, com representantes dos países signatários da Convenção do Metro.

Juntamente com o BIPM, o CIPM e a CGPM, compõem o Sistema Internacional de Metrologia, os laboratórios Nacionais de cada um dos países signatários da Convenção do Metro. No caso do Brasil, O INMETRO é o órgão representante e participante do sistema. Obviamente, tornou-se necessário o estabelecimento de estruturas nacionais de metrologia cuja finalidade fosse a de coordenar e programar ações em cada país de acordo com suas necessidades e possibilidades econômico-políticas. A distribuição das principais organizações metrológicas no mundo pode ser vista na figura 1 (SANTANA, 2012,).



**Figura C. 1: Diagrama representativo da estrutura Metrológica**

### **C.1.2 Sistema Metrológico Brasileiro**

O Sistema Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (SINMETRO) possuía finalidade de coordenar as atividades relacionadas à Metrologia, normalização, qualidade e avaliação da conformidade. Foi criado pela lei 5966, de 11 de dezembro de 1973. O sistema tem por função atender as necessidades da indústria, comércio, do governo e do consumidor (DIAS, 1998, SANTANA, 2012).

O SINMETRO é composto por diversas organizações, entre as quais podemos citar:

- CONMETRO e seus comitês Técnicos (órgão normativo)
- INMETRO (órgão executivo)
- Organismos de Certificação Acreditados.
- Organismos de Inspeção Acreditados
- Laboratórios Acreditados – para Calibrações: Rede Brasileira de Calibração (RBC) e para Ensaios: Rede Brasileira de Laboratórios de Ensaio (RBLE).
- Associação Brasileira de Normas Técnicas – ABNT
- Institutos Estaduais de Pesos e Medidas – IPEM
- Redes Metrológicas Estaduais.

Como instância máxima em Metrologia no Brasil, o SINMETRO é responsável por determinar as responsabilidades e orientar as ações em diversas áreas. Essas ações não são implementadas diretamente pelo SINMETRO, mas pelos demais órgãos metrológicos do país, principalmente pelo INMETRO. Entre as áreas que o SINMETRO abrange, destacamos sua importância para (DIAS, 1998, SANTANA, 2012):

- Metrologia Científica e Industrial
- Metrologia Legal
- Normalização e Regulamentação Técnica
- Acreditação
- Certificação
- Ensaios e Calibrações

### **C.1.3 Instituto Nacional de Metrologia, Qualidade e Tecnologia (INMETRO)**

O INMETRO é o órgão executor das políticas nacionais de Metrologia, Qualidade e Avaliação da Conformidade. Sua missão é promover confiança à sociedade brasileira nas medições e nos produtos, por intermédio da Metrologia da Avaliação da Conformidade, promovendo a harmonização das relações de consumo, a inovação e a competitividade do país. (SANTANA, 2012). Em suas ações, o INMETRO busca fortalecer as empresas nacionais pelo aumento de sua produtividade e por meio da adoção de mecanismos destinados à melhoria da qualidade de produtos e serviços (DIAS, 1998).

Em suas áreas de atuação o INMETRO possui reconhecimento internacional, e participa dos acordos firmados com foros internacionais de acreditação e certificação, além de acordos de cooperação com os principais institutos de Metrologia do mundo, cujas principais atividades desenvolvidas são:

- Metrologia Científica e Industrial
- Metrologia Legal
- Avaliação da Conformidade
- Organismo Acreditador

### **C.1.4 Estrutura Brasileira da Metrologia Científica e Industrial**

O INMETRO, por intermédio da Diretoria de Metrologia Científica e Industrial (DIMCI), tem a responsabilidade de manter as unidades fundamentais de medida, garantir a rastreabilidade aos padrões internacionais e disseminá-las, com seus múltiplos e submúltiplos, até as indústrias (DIAS, 1998, SANTANA, 2012, VIM, 2012).

Em Metrologia Científica, o INMETRO/DIMCI tem como principais metas:

- Intercomparar periodicamente os padrões nacionais e internacionais.
- Estabelecer metodologias para a intercomparação nacional de padrões, instrumentos de medição e medidas materializadas.
- Calibrar padrões de referência dos laboratórios acreditados, rastreando-os aos padrões nacionais.
- Efetuar pesquisas visando à obtenção de medições mais exatas e melhor reprodução das unidades do Sistema Internacional.
- Incentivar a acreditação de laboratórios, visando descentralizar serviços metrológicos ao longo do país, avaliando a conformidade com normas

internacionais e comprovando condições adequadas à realização de serviços metrológicos específicos, para faixas de valores e incertezas de medição estabelecidas.

O INMETRO conta, ainda, com laboratórios metrológicos não próprios – denominados laboratórios designados – que recebem a delegação desse Instituto para manter os padrões nacionais de áreas específicas e são por ele supervisionados (DIAS, 1998, SANTANA, 2012). Sendo eles:

- Divisão Serviço da Hora do Observatório Nacional (DSHO/ON)
- Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN)

## **C.2 Metrologia de Radionuclídeos**

O LNMRI desde 1989 por meio de designação do Instituto Nacional de Metrologia, Qualidade e Tecnologia (INMETRO), uma autarquia vinculada ao Ministério do Desenvolvimento, Indústria e Comércio, passou a ser o responsável em todo o território nacional pela metrologia de radiações ionizantes passando a denominar-se Laboratório Nacional. Desde então o LNMRI tem sobre si a responsabilidade de garantir a coerência nacional das medidas efetuadas no âmbito das radiações ionizantes, assegurando a qualidade e rastreabilidade ao sistema Internacional de Metrologia (SIM). (Apostila de Radionuclídeos).

A metrologia de radionuclídeos é a área de concentração das medições relacionadas às radiações ionizantes onde a maior grandeza de interesse para a medida da radiação é a atividade (TAUHATA, 2015, Apostila de Radionuclídeos). O LNMRI realiza os serviços de calibração e monitores de área, dosímetro clínicos e da preparação e padronização de fontes radioativas de referência e ainda desenvolve atividades de pesquisa e desenvolvimento visando à implantação e melhoria de técnicas e procedimentos metrológicos.

O LNMRI dentro de suas atribuições como laboratório nacional desenvolve programas nacionais de garantia da qualidade para laboratórios de medida de atividade. Ele também executa um programa de qualificação técnica de instrumentos de medida de radiação visando à melhoria da qualidade da indústria brasileira. Por ser um laboratório nacional, O LNMRI tem acesso direto e gratuito aos serviços e programas do BIPM, responsável pela coerência mundial da metrologia para as grandezas de base. Para

garantir sua qualidade metrológica o LNMRI participa de intercomparações promovidas pelo BIPM para a padronização de radionuclídeos (TAUHATA, 2015)

### **C.2.1 A importância dos sistemas de medições**

A radioatividade é em um grau maior ou menor transitória, visto que a maioria dos eventos nucleares é de caráter probabilístico. Além disso, cada radionuclídeo tem um processo peculiar de decaimento, estabelecendo um problema diferente para cada medição. Não existe então um padrão que seja permanente, mesmo que arbitrário, de radioatividade (Apostila de Radionuclídeos). Porém, isto não impede que existam os padrões de radioatividade, que são essenciais para determinar, por exemplo, os efeitos biológicos e fisiológicos que podem ser relacionados em resposta a uma dada quantidade de radiação aplicada, através de padrões de atividade, que são utilizados para calibrar os equipamentos de medição utilizados por diferentes pesquisadores.

Para que isso possa ser realizado é necessário a existência de padrões nacionais e internacionais sob contínua disponibilidade. Esses padrões, que deveriam incluir a maioria dos radionuclídeos de interesse, são, entretanto, difíceis de serem mantidos, principalmente os de meia-vida curta, estando acima da capacidade dos laboratórios nacionais e dos comerciais da grande maioria dos países. Essa dificuldade tem sido resolvida através da manutenção de instrumentos calibrados, de maior ou menor grau de complexidade, todos normalizados por calibrações em relação aos sistemas nacionais e internacionais de medidas de radioatividade com uma ampla variedade de radionuclídeos e diferentes modos de decaimento (apostila de radionuclídeos/TAUHATA).

### **C.3 Rastreabilidade Metrológica como parâmetro da garantia de qualidade**

De acordo com os subitens vistos anteriormente, percebe-se a relevância dos aspectos que norteiam a aplicação da Metrologia na área científica. Dentre estes aspectos, um dos mais relevantes se refere à rastreabilidade metrológica, que consiste na capacidade que uma medição tem de estar relacionada, por meio de uma cadeia ininterrupta de calibrações com um padrão internacional. (SANTANA, 2012). Este princípio busca refazer o caminho das sucessivas comparações até um padrão reconhecido nacional ou internacionalmente. Podemos analisar a definição do VIM 2012 sobre o termo “rastreabilidade”:

## ***Rastreabilidade Metrológica***

*“Propriedade de um resultado de medição pela qual tal resultado pode ser relacionado a uma referência através de uma cadeia ininterrupta e documentada de calibrações, cada uma contribuindo para a incerteza de medição”.*

Esta é uma citação mais concisa (VIM, 2012), mas podemos concluir que qualquer medição que esteja ligada a uma referência por intermédio de uma cadeia de calibrações com suas incertezas bem estabelecidas é metrologicamente rastreável. Desta forma, pode-se estabelecer o conceito de **cadeia de rastreabilidade metrológica** que nada mais é do que a linha que permite ligar um resultado de medição à referência anteriormente definida.

Toda essa estrutura que sustenta a cadeia de calibrações deve estar ligada a definição do Sistema Internacional de Unidades (SI), pois uma vez que esteja ligada a definição da unidade ou grandeza é possível então estabelecer outra referência a partir da definição do SI.

A verificação direta por organizações especializadas de todos os padrões disponíveis para as várias grandezas radiológicas é de extrema dificuldade. Para atender estas exigências, continuamente são estabelecidos os programas de garantia da qualidade, de intercomparações laboratoriais, e de verificação de medições (rastreamento), a nível nacional e internacional, permitindo assim atingir um alto grau de confiabilidade nas medições e nos padrões de utilização mais comum.

O sistema internacional de rastreabilidade de medidas de radioatividade compreende uma estreita colaboração entre os principais laboratórios de metrologia de radionuclídeos de todo o mundo. Ele envolve duas principais atividades organizadas pelo BIPM:

- Programas de intercomparação laboratoriais onde amostras de uma mesma solução radioativa preparada pelo BIPM são enviadas aos diferentes laboratórios participantes para sua medição e posterior comparação e avaliação dos resultados obtidos pelos diversos laboratórios nacionais (SANTANA, 2012).
- O Sistema Internacional de Referência (SIR) permite que laboratórios nacionais submetam ao BIPM soluções radioativas com concentração de atividade medida para verificação e registro. Estas amostras são

avaliadas pelo BIPM e outros laboratórios participantes e o valor da atividade e incerteza associada são notificados para a verificação pelo laboratório solicitante das consistências de seus próprios métodos e resultados (APOSTILA DE RADIONUCLÍDEOS).

A figura abaixo é amplamente divulgada e foi retirada do site do INMETRO e representa a hierarquia dos padrões associados à rastreabilidade metrológica.



**Figura C. 2: Hierarquia do sistema metrológico<sup>13</sup>**

#### **C.4 Métodos Absolutos e Relativos de medição de atividade de radionuclídeos**

Os métodos de medição da radioatividade de um material, assim como as demais grandezas físicas, podem ser absolutos ou relativos. Os métodos absolutos permitem a determinação da grandeza atividade de uma fonte radioativa diretamente por meio de contagens observadas, sem a necessidade de promover uma comparação com uma fonte de referência de mesma natureza; Os padrões radioativos produzidos deste modo são considerados padrões absolutos ou padrões primários (apostila de radionuclídeos).

Os métodos relativos por sua vez necessitam que para a determinação do parâmetro atividade se tenha disponível um padrão ou uma referência conhecida além

<sup>13</sup> Adaptado de: INMETRO. Disponível em: <http://www.inmetro.gov.br/metCientifica/estrutura.asp>. Acesso em 21/03/2017

da eficiência dos detectores utilizados no processo de medição que pode ser obtida experimentalmente usando fontes radioativas padronizadas pelos métodos absolutos (TAUHATA, 2015).

Podemos enumerar os métodos absolutos disponíveis no LNMRI como sendo de cinco tipos:

- Pico-soma
- Coincidência  $\gamma$ - $\gamma$
- Coincidência  $\beta$ - $\gamma$
- Anti-coincidência
- TDCR *Cherenkov Counting*

Todos os métodos absolutos descritos acima foram utilizados em intercomparações nacionais e internacionais mediante a participação do LNMRI. Diversos radionuclídeos já foram padronizados utilizando os métodos absolutos e rendendo ao Brasil a posição de destaque entre os países participantes das intercomparações.

Os métodos relativos que também são utilizados no LNMRI podem ser enumerados como sendo:

- Câmaras de Ionização padrão secundário (IG11 e IG12 rastreadas ao BIPM)
- Espectrometria Gama de alta resolução

Os métodos relativos embora necessitem de comparação prévia com um padrão disponível em laboratório, permite obter resultados mais rapidamente do que os métodos absolutos, muita das vezes proporcionando a obtenção de valores de incerteza compatíveis àqueles obtidos pelos métodos absolutos. Comparativamente, os métodos relativos se tornam uma opção a mais para efetuar as medições e demais calibrações e no caso da espectrometria gama, permite conhecer continuamente a qualidade dos sistemas de medição (detectores) baseados na composição contínua das curvas de eficiência (apostila de radionuclídeos).

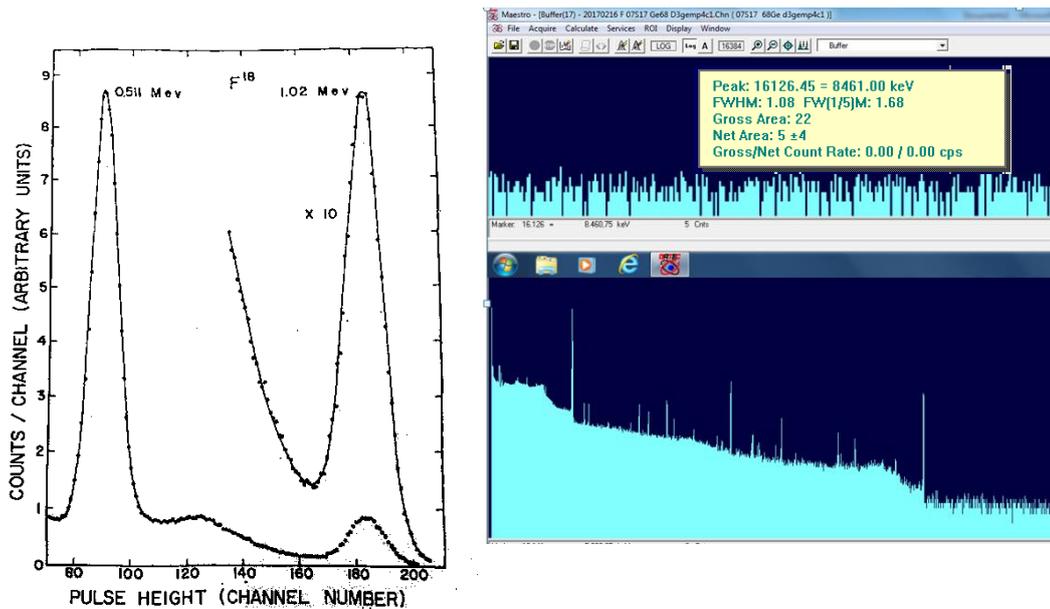
## **ANEXO D – Evolução da Espectrometria**

### **D.1 Os avanços na ciência nuclear**

Todo o conhecimento sobre a estrutura nuclear vem de três pilares principais: (a) Decaimento Radioativo (b) Reações Nucleares (c) Altas Energias ou reações de partículas elementares. Há certa sobreposição, particularmente entre os dois primeiros, tanto no que se refere às técnicas experimentais como ao tipo de informação obtida. O terceiro é bastante distante dos outros dois e se tornou uma área de estudo de um novo domínio físico, em alguns aspectos distantes da física nuclear de baixas energias (CARUSO, 2006, SIEGBAHN, 1965).

A espectroscopia de raios alfa, beta e gama é frequentemente usada como sinônimo do campo a), embora essas radiações, naturalmente, também ocorram em reações nucleares. No decaimento radioativo apenas os níveis nucleares mais baixos estão excitados, até a ordem de alguns poucos MeV. É importante ter isto em mente devido às limitações inerentes às informações que dele resultam. Os fenômenos que são acessíveis para o estudo dessas energias são, no entanto, de fundamental importância para a compreensão da estrutura nuclear em geral. (SIEGBAHN, 1965).

Uma grande variedade de técnicas, experiências e teorias desenvolveu-se fora do campo da espectroscopia gama e um grupo bastante disperso de fenômenos foi submetido a estudos. A estrutura nuclear e as propriedades quânticas dos estados nucleares e dos níveis excitados constituem um dos campos mais importantes. (CARUSO, 2006) O progresso contínuo na resolução espectroscópica permitiu nos anos 60 uma visão detalhada dos esquemas de nível. Desde aí, houve um período muito bem-sucedido de desenvolvimentos interessantes de modelos de estrutura nuclear, juntamente com o desenvolvimento das tecnologias que permitem medir os parâmetros nucleares de interesse (SIEGBAHN, 1965).



**Figura D. 1: Diferença entre um espectro obtido na década de 50 com 200 canais e um obtido por um software moderno em 2017 com mais de 16000 canais (poder de resolução 80 vezes maior)**

Por outro lado, os métodos experimentais nessa época não foram desenvolvidos o suficiente de tal forma que fosse possível obter um trabalho fecundo na espectroscopia nuclear. Quando os isótopos produzidos artificialmente se tornaram disponíveis durante os anos 40, o domínio da espectroscopia nuclear desenvolveu-se muito. Para começar, a falta de métodos experimentais adequados e as dificuldades de entrega dessas fontes resultaram em inúmeras conclusões errôneas sobre conversão e linhas gama e outras características dos decaimentos (SIEGBAHN, 1965).

Grandes esforços foram feitos na época para desenvolver instrumentos com os quais dados experimentais de alta qualidade pudessem ser obtidos. Espectrômetros magnéticos de alta resolução foram projetados, o que, juntamente com melhores métodos de coincidência e procedimentos radioquímicos mais avançados e separações de isótopos, foram capazes de fornecer dados conclusivos sobre esquemas de desintegração nuclear (SIEGBAHN, 1965).

As técnicas refinadas utilizando um contador proporcional e os métodos de contador por cintilação, introduzidos no final dos anos 40, ampliaram consideravelmente as possibilidades experimentais. As altas eficiências desses contadores no registro de quantum gama e as respostas rápidas tornara-os extremamente úteis em muitos tipos de experiências de coincidência. Além disso, a distribuição de

energia da radiação pode ser estudada por analisadores de altura de pulso. Devido à natureza estatística do registo, a resolução era muito menor do que quando comparados aos espectrómetros magnéticos, sendo cerca de 10% a 0,5 MeV e que vai diminuindo com o quadrado da energia (SIEGBAHN, 1965).

Verificou-se que a maioria dos problemas na espectroscopia nuclear não pode ser abordada com êxito por um único instrumento ou por um método particular. Em vez disso, o espectroscopista nuclear precisou observar o problema a partir de diferentes ângulos e julgar as técnicas ou até mesmo a melhor combinação de métodos a serem utilizados (SIEGBAHN, 1965).

O maior e mais poderoso desenvolvimento da década de 65 foi o detector semicondutor. Uma vez que a energia necessária para criar um par de íons num dispositivo deste tipo era muito menor do que num cristal de cintilação, o poder de resolução atingível pode ser consideravelmente aumentado. A eficiência era menor e a resposta mais lenta, entretanto. O ruído do amplificador foi um dos fatores limitantes nesse período. Relatos de obtenção de resolução menor do que 5 keV (sendo aproximadamente independente de energia) foram percebidos em condições especiais. Muitos analisadores multicanais também foram desenvolvidos, o que tornou possível a execução de muitos tipos de experiências (SIEGBAHN, 1965).

A base teórica para tais considerações em meados dos anos 70 era baseada em incertezas. A dificuldade mais séria na espectroscopia nuclear naquela época, no entanto, foi a falta de um modelo nuclear útil. Nenhum trabalho sistemático realmente frutífero foi feito e, portanto, houve apenas uma conexão frouxa entre os resultados de investigações experimentais e a estrutura nuclear, conexão esta que só seria fortificada anos depois (SIEGBAHN, 1965).

## ANEXO E – Cálculo dos desvios percentuais

Desvio percentual em relação aos valores do método pico-soma ( <sup>22</sup> Na)													
Fonte	A1	A2	δ (%)	u A1 (%)	u B1 (%)	ua12	ub12	U1(%)	Ua2 (%)	Ub2 (%)	Ua22	Ub22	U2 (%)
06S16	1,317	1,188	10,9	0,16	0,3	0,026	0,09	0,34	0,03	0,23	0,0009	0,0529	0,23
07S16	2,563	2,418	6	0,05	0,3	0,003	0,09	0,3	0,02	0,23	0,0004	0,0529	0,23
08S16	1,546	1,47	5,2	0,15	0,3	0,023	0,09	0,34	0,02	0,23	0,0004	0,0529	0,23
09S16	3,373	3,364	0,3	0,1	0,3	0,01	0,09	0,32	0,02	0,23	0,0004	0,0529	0,23
10S16	1,838	1,951	-5,8	0,13	0,4	0,017	0,16	0,42	0,26	0,34	0,0676	0,1156	0,43
Incerteza	U2(%)	k=2	0,48										
	U1(%)	K=2	1,28										

Desvio percentual em relação aos valores do método pico-soma ( <sup>65</sup> Zn)													
Fonte	A1	A2	δ (%)	u A1 (%)	u B1 (%)	ua12	ub12	U1(%)	Ua2 (%)	Ub2 (%)	Ua22	Ub22	U2 (%)
22S16	3,186	2,887	10,4	0,25	0,34	0,063	0,116	0,42	0,27	0,7	0,0729	0,4900	0,75
23S16	2,959	2,315	27,8	0,26	0,34	0,068	0,116	0,43	0,46	0,7	0,2116	0,4900	0,84
24S16	3,572	3,723	-4,8	0,26	0,34	0,068	0,116	0,43	0,18	0,7	0,0324	0,4900	0,72
25S16	2,675	*		0,17	0,34	0,029	0,116	0,38	*	*	*	0,0000	0,00
26S16	2,570	2,32	10,8	0,74	0,34	0,548	0,116	0,81	0,31	0,7	0,0961	0,4900	0,77
Incerteza	U2(%)	k=2	0,54										
	U1(%)	K=2	1,35										

Desvio percentual em relação aos valores do método pico-soma ( <sup>60</sup> Co)													
Fonte	A1	A2	δ (%)	u A1 (%)	u B1 (%)	ua12	ub12	U1(%)	Ua2 (%)	Ub2 (%)	Ua22	Ub22	U2 (%)
44S16	4,421	4,343	1,8	0,03	0,23	0,0009	0,053	0,23	0,03	0,23	0,0009	0,0529	0,23
45S16	3,578	3,539	1,1	0,04	0,23	0,002	0,053	0,23	0,04	0,23	0,0016	0,0529	0,23
46S16	2,975	2,929	1,6	0,04	0,23	0,002	0,053	0,23	0,04	0,23	0,0016	0,0529	0,23
Incerteza	U2(%)	k=2	0,23										
	U1(%)	K=2	0,23										

Desvio percentual em relação aos valores do método pico-soma ( <sup>54</sup> Mn)													
Fonte	A1	A2	δ (%)	u A1 (%)	u B1 (%)	ua12	ub12	U1(%)	Ua2 (%)	Ub2 (%)	Ua22	Ub22	U2 (%)
17S16	1,53	1,576	-2,9	0,32	0,6	0,102	0,36	0,68	0,8	0,1	0,6400	0,0100	0,81
18S16	1,876	1,985	-5,5	0,32	0,6	0,102	0,36	0,68	0,8	0,1	0,6400	0,0100	0,81
19S16	2,181	2,319	-6,0	0,21	0,6	0,044	0,36	0,64	0,6	0,1	0,3600	0,0100	0,61
20S16	1,757	1,836	-4,3	0,33	0,6	0,109	0,36	0,68	0,3	0,1	0,0900	0,0100	0,32
21S16	1,753	1,817	-3,5	0,19	0,6	0,036	0,36	0,63	0,7	0,1	0,4900	0,0100	0,71
Incerteza	U2(%)	k=2	1,68										
	U1(%)	K=2	1,3										

Desvio percentual em relação aos valores do método pico-soma ( <sup>121</sup> Te)													
Fonte	A1	A2	δ (%)	u A1 (%)	u B1 (%)	ua12	ub12	U1(%)	Ua2 (%)	Ub2 (%)	Ua22	Ub22	U2 (%)
172S14	695	696,4	-0,2	0,5	2,1	0,25	4,41	2,16	0,5	0,1	0,25	0,01	0,51
173S14	560	570	-1,8	0,59	2,1	0,348	4,41	2,18	0,3	0,1	0,09	0,01	0,32
173S14	600	599	0,2	0,39	2,1	0,152	4,41	2,14	0,15	0,1	0,0225	0,01	0,18

174S14	689	604,7	13,9	0,27	2,1	0,073	4,41	2,12	0,35	0,1	0,1225	0,01	0,36
175S14	600	596,5	0,6	0,47	2,1	0,221	4,41	2,15	0,36	0,1	0,1296	0,01	0,37
<b>Incerteza</b>	<b>U2(%)</b>	<b>k=2</b>											
	<b>U1(%)</b>	<b>K=2</b>											