LAIS PIMENTA DE MOURA

MÉTODO DE COINCIDÊNCIA GENERALIZADO PARA A MEDIDA ABSOLUTA DA ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS - APLICAÇÃO NA DETERMINAÇÃO DO COEFICIENTE DE CONVERSÃO INTERNA DA TRANSIÇÃO DE 279 Kev DO Tl^{203}

Tese de doutoramento apresentada à Universidade de Campinas
São Paulo - Brasil

Dezembro de 1969

ERRATA

página	parágrafo	linha	onde se lê	leia-se
6	3º	3a.	inferência através da comparação com a teoria dos spins	inferência, através da comparação com a teoria, dos spins
11	2a. fórmula		−	+
16	2º	6a.	ou no caso de haver um grupo beta	ou no caso de haver um só grupo beta
16	3º	3a.	quando	quanto
17	3º	4a.	apresentem um outro tipo de ...	apresentem um ou outro tipo de ...
21	3a. fórmula		ε_r	$\varepsilon\beta_r$
52	3º	3a.	quantidade	quantidades
57	1º	13a.	$N_\beta N_\gamma/N_o N_e$	$N_\beta N_\gamma/N_o N_c$
58	trocar página 58 por fôlha anexa			
70	3º=	6a.	excessão	exceção

a meus pais
a Carlos
a Guilherme

Agradecimentos

Agradeço ao Prof. Marcello Damy de Souza Santos, criador do Laboratório de Metrologia Nuclear do Instituto de Energia Atômica de São Paulo e meu orientador na carreira científica, sem quem êste trabalho não se teria realizado.

Agradeço à pesquisadora Dagmar Carneiro da Cunha Reis com quem montei e organizei o Laboratório de Metrologia Nuclear do IEA e que foi a principal responsável pela construção e colocação em funcionamento do sistema de medidas por coincidências utilizado no presente trabalho.

Agradeço à física Nelcy Farani que se incumbiu da obtenção e preparação dos dados;e à técnica em química Ana Luiza Borges encarregada da produção dos filmes e das fontes radioativas, como também, da execução dos gráficos.

Agradeço aos colegas dos diversos setores do IEA que contribuiram para o bom têrmo dêste trabalho, em particular, àqueles pertencentes à Divisão de Física Nuclear, à Divisão de Radioquímica, à Oficina Mecânica, ao Serviço de Eletrônica e ao Serviço de Cálculo Analógico e Digital. Nêste último, agradeço, em particular, à matemática Odette Guedes pela elaboração dos programas para computador relativos aos testes estatísticos aqui apresentados.

Agradeço à pesquisadora Lia Queiroz do Amaral pelas discussões elucidativas no decorrer da redação do manuscrito e por suas pertinentes sugestões.

Agradeço à Srta. Virginia Schmidt pela dedicação com que realizou os trabalhos de datilografia e composição desta tese.

Agradeço ao Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni, Diretor do IEA , e à Comissão

Nacional de Energia Nuclear por terem proporcionado condições para o desenvolvimento de minhas atividades científicas exercidas, nêstes últimos sete anos, na Divisão de Física Nuclear do Instituto de Energia Atômica.

ÍNDICE

	PREFÁCIO	1
	INTRODUÇÃO	4
	CAPÍTULO I	19
	O PROBLEMA GERAL DAS COINCIDÊNCIAS NO SISTEMA $4\pi\beta(PC)-\gamma$	19
I.1.	Considerações sôbre o efeito de conversão interna na medida de coincidência utilizando o sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$	19
I.2.	Fórmulas básicas do método de coincidência generalizado	21
I.3.	Condições e dedução da fórmula de coincidência generalizada	24
I.4.	Forma prática da fórmula de coincidência generalizada	28
I.5.	Particularização da fórmula de coincidência generalizada para eficiências dos grupos beta linearmente relacionados	30
I.6.	Êrros sistemáticos na medida absoluta da atividade pelo método de coincidência generalizado utilizando o sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$	35
	CAPÍTULO II	37
	MEDIDA DO COEFICIENTE DE CONVERSÃO INTERNA TOTAL DA TRANSIÇÃO DE 279 KEV DO Tl	37
II.1.	Fórmula de coincidência generalizada para o Hg^{203}	38
II.2.	Descrição do sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$ do IEA	41
II.3.	Descrição das fontes de Hg^{203}	46
II.4.	Determinação experimental da reta de eficiência para o Hg^{203}	47
II.5.	Limite superior do intervalo de variação de $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ - Significado da curva de eficiência	53
II.6.	Determinação de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1+\alpha)$	60
II.7.	Estimativa do valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para o Hg^{203}	64

II.8. Resultados finais 68
CONCLUSÕES 73
APÊNDICE 75
BIBLIOGRAFIA 81

PREFÁCIO

Êste trabalho, realizado no Laboratório de Metrologia Nuclear da Divisão de Física Nuclear do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, pertence especìficamente ao campo da Metrologia de Radionuclídeos.

Metrologia de Radionuclídeos é a ciência que se ocupa de medidas precisas do valor absoluto da atividade de fontes radioativas. Seu início deu-se na primeira década dêste século quando Marie Curie, em Paris, e Otto Hönigschmid, em Viena, realizavam os primeiros padrões de radium.

A Metrologia de Radionuclídeos desenvolveu-se lentamente e seu campo foi restrito até cêrca de 1950, quando houve um renascimento do interêsse pela medida absoluta de atividade, motivado pela produção em larga escala de radioisótopos artificiais em reatores nucleares. Diante dos progressos na eletrônica de impulsos e na construção de novos tipos de detectores de radiação e, em vista, do melhor conhecimento das características de desintegração dos radioisótopos artificiais, foram modificados os seus métodos de medida e, em consequência, alterada a ordem de grandeza das precisões alcançadas.

As publicações das conferências internacionais versando especìficamente sôbre padronização de radionuclídeos - Washington, 1949 (CW50); Tidewater Inn, 1957 (CT58); Viena, 1959 (CV60); Viena, 1966 (CV67) - mostram o rítmo da evolução nêste domínio, através de trabalhos que apresentam as inovações e os aperfeiçoamentos dos métodos e das técnicas de medida, como também, o número crescente de radioisótopos calibrados com êrros de frações de porcento.

Ainda que a finalidade primordial da medida absoluta seja a produção de padrões, as altas precisões alcançadas no campo da calibração de radionuclídeos, tornam vantajosos seus métodos para a determinação de certos parâmetros nucleares.

Em São Paulo, o Laboratório de Metrologia Nuclear foi criado em 1964, por iniciativa do Prof. Marcello Damy de Souza Santos. Nos três primeiros anos,todos os esfôrços nêle desenvolvidos concentraram-se na construção, montagem e estabelecimento das condições de operação de um sistema de contagens por coincidências para medidas de alta precisão, bem como, no desenvolvimento de técnicas paralelas exigidas pela ordem de grandeza das precisões visadas.

O sistema de coincidência do IEA obedece a um princípio convencional adotado pela maioria dos laboratórios especializados no assunto, devido às suas excelentes características operacionais e à sua versatilidade, sendo prevista por êle a detecção de coincidências beta-gama, alfa-gama e (elétron Auger ou raio--X)-gama. Em virtude da maior ocorrência de nuclídeos que se desintegram por emissão beta e por serem estas radiações detectadas em contador proporcional de geometria 4π, é normalmente designado sistema de coincidência $4\pi\beta(PC)-\gamma$.

Em 1967, o LMN do IEA participou da "International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of Co^{60}", organizada pelo Bureau International des Poids et Mesures. Os resultados obtidos coincidiram, dentro do êrro experimental, com os valôres divulgados posteriormente pelo BIPM (Mü67) (Mo67a).

Ainda no ano de 1967, esteve em visita ao LMN, durante um mês, a convite da Comissão Nacional de Energia Nuclear, o Prof. A. Rytz, físico responsável pela Secção de Radiações Ionizantes do BIPM. Analisou os métodos de trabalho e as linhas de pesquisa adotados por êste Laboratório, aprovando-os e contribuindo para o seu desenvolvimento com valiosas sugestões.

Atualmente, o LMN desenvolve um programa a longo prazo de diversificação de seus métodos de medida, e, simultâneamente, propõe-se à ampliação do número de radionuclídeos calibrados em seus dois sistema de coincidência, com precisões superiores a 99%.

Êste trabalho apresenta, como parte do último programa, o estudo de uma análise do método de coincidência generalizado para esquemas de desintegração complexos e a verificação experimental da validez, para os sistemas $4\pi\beta(PC)-\gamma$

do IEA, dêste método para nuclídeos apresentando transições pelo processo de conversão interna. Com êste intuito foi utilizada a transição de 279 Kev que se segue à desintegração do Hg^{203}. O coeficiente de conversão interna total desta transição foi determinado pelo método de coincidência generalizado e comparado com os valôres experimentais e teóricos encontrados na literatura.

INTRODUÇÃO

A partir da descoberta da radioatividade em 1896, por Becquerel, os radionuclídeos têm sido estudados intensa e ininterruptamente, com diversos propósitos, pela Física Nuclear, bem como, pelas ciências que com êles se originaram, como a Radioquímica e a Radiobiologia, ou, as que os aplicam, como a Medicina e a Agricultura.

Por radionuclídeos entende-se nuclídeos que, embora encontrando-se no estado fundamental, desintegram-se com meia vida mensurável, emitindo partículas beta, alfa, ou capturando um elétron orbital. Os radionuclídeos tendem aos nuclídeos estáveis, os quais, em contraposição, não se desintegram ou o fazem com meia vida grande demais para que o fenômeno possa ser observado (Gr55).

Ao se desintegrar o radionuclídeo transmuta-se em um nuclídeo de número atômico diferente, o qual, energèticamente pode estar no estado fundamental ou em estado excitado. No último caso ocorre o processo de de-excitação, geralmente pela emissão de um ou mais raios gama ou por conversão interna. O intervalo de tempo decorrido entre a emissão das radiações de desintegração e de de-excitação é, em geral, extremamente pequeno, uma vez que a meia-vida dos estados excitados varia de 10^{-4}s, para transições de baixa energia, até 10^{-13}s, para energias próximas de 3 Mev (Si55).

Os fenômenos da desintegração radioativa e da de-excitação nuclear são estudados pela Mecânica Quântica, que fornece, segundo o modêlo nuclear adotado, as probabilidades de transição, ou seja, de emissão de partículas ou de radiações de determinadas energias, em função dos parâmetros nucleares e dos números quânticos característicos dos níveis nucleares. Êstes podem, portanto, ser conhecidos através de determinações experimentais significativas das probabilidades de transição.

Cada tipo particular de desintegração é o resultado de diferentes processos ocorridos no núcleo, e, portanto, em cada qual as radiações são emitidas com características diferentes. A desintegração alfa, por exemplo, dá-se pela emissão de partículas monoenergéticas, enquanto a desintegração beta caracteriza-se pela distribuição contínua de energia das radiações emitidas, desde zero até uma energia máxima. Por outro lado, as energias das partículas alfa variam entre cêrca de 4 e 9 Mev, enquanto as energias máximas das radiações beta situam-se em geral, entre algumas dezenas de Kev e cêrca de 5 Mev.

No processo de desintegração por captura eletrônica, que é competitivo com a desintegração por emissão de elétrons positivos, são emitidos, em consequência da lacuna deixada pela captura de um elétron orbital, raios X característicos do nuclídeo resultante ou elétrons Auger.

Nas transições de de-excitação nuclear a emissão de radiação gama compete com o processo de conversão interna.

Entende-se por conversão interna o processo pelo qual o núcleo transfere sua energia de excitação a um dos elétrons orbitais, o qual, em consequência, é ejetado do átomo. A relação entre o número de elétrons de conversão por segundo, N_e, e o número de fótons por segundo, N_γ , é chamada de coeficiente de conversão interna total α (Ro58), ou seja,

$$\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma}$$

O coeficiente de conversão interna total é igual a soma dos coeficientes de conversão interna das várias camadas ou subcamadas atômicas, ou seja,

$$\alpha = \sum_i \alpha_i \qquad \text{para } i = K,\ L_I, L_{II}, L_{III}, \ldots$$

onde

$$\alpha_i = \frac{N_e}{N_\gamma}\, i$$

Encontram-se com frequência os valores dos coeficientes de conversão interna relativos, representados simbòlicamente por K/L/M significando N_{e_K}/ N_{e_L} / N_{e_M} ou $\alpha_K/ \alpha_L/ \alpha_M$.

Em consequência da emissão de um elétron orbital, são emitidos ainda, quando do processo de conversão interna, raios X característicos ou elétrons Auger.

A importância da determinação experimental dos coeficientes de conversão interna reside na possibilidade de determinação do tipo da transição e de inferência através da comparação com a teoria dos spins e paridades relativos dos estados de excitação do núcleo.

Embora bastante diversificados os processos pelos quais se dá a desintegração radioativa, todos êles são regidos por uma lei exponencial, deduzida em 1903 por Rutherford e Soddy, e em 1905, por von Schweidler ao descrever a radioatividade como um fenômeno eminentemente estatístico. O significado desta lei torna-se, entretanto, mais claro, quando é obtida como solução da equação diferencial

$$\frac{dN}{dt} = - \lambda N$$

que estabelece que o número N de átomos de um dado nuclídeo que se desintegra por um determinado processo de desintegração, em um intervalo infinetesimal de tempo, é proporcional ao número de átomos presentes. A constante de proporcionalidade, λ, é características do radionuclídeo para o processo em questão.

Desta forma as atividades devidas a radionuclídeos de mesma espécie ou de espécies diferentes podem ser comparadas pelo número de átomos que se desintegram na unidade de tempo. Sob êsse enfoque, torna-se óbvia a unidade de atividade atualmente adotada: número de desintegrações por segundo (dps)(Ga61) . O curie, originalmente definido como a quantidade de radon em equilíbrio radioativo com uma grama de radium, hoje é apenas uma abreviação para $3,7 \times 10^{10}$ desintegrações por segundo, ou seja, $1\ Ci = 3,7 \times 10^{10}$ d.p.s.

Como para as demais grandezas físicas, os métodos de medida de atividade podem ser relativos ou absolutos.

Os métodos absolutos para a medida de atividade com alta precisão, atualmente reduzem-se aos métodos diretos, os quais não necessitam do conhecimento prévio do valor de uma grandeza auxiliar, baseando-se apenas na grandeza fundamental da fórmula dimensional da radioatividade, ou seja, no tempo (Ga61).

Êstes são os métodos utilizados, com poucas exceções, para a calibração de fontes radioativas de referência que constituem os padrões de atividade.

A técnica que consiste em medir as radiações da desintegração dos radionuclídeos em coincidência data de 1910, quando das investigações de H.Geiger e E. Marsden a respeito das séries radioativas. Entretanto, somente em 1924 esta técnica foi utilizada para a determinação absoluta da atividade, por H. Geiger e A. Werner, medindo a coincidência da radiação de desintegração com a radiação gama de de-excitação.

Até então as coincidências eram detetadas visualmente pelos observadores que registravam as cintilações devidas às radiações emitidas "simultâneamente" pelo radionuclídeo em estudo.

Novas perspectivas para a aplicação efetiva das medidas de coincidência surgiram em 1929, quando W. Bothe relatou um circuito eletrônico no qual as coincidências eram identificadas diretamente por meio de pulsos eletrônicos e, em 1934, quando B. Rossi divulgou o projeto de um circuito de coincidência de maior eficiência cujo princípio é ainda hoje adotado.

Quanto ao tipo de contador para a detecção das partículas beta na técnica de coincidência beta-gama, couberam a W. Bothe e H.J. v.Bayer, em 1935, as primeiras considerações relativas à vantagem especial do uso de um contador de geometria 4π, operando na região proporcional. Observaram, ainda, a conveniência do emprêgo de absorvedores que impedissem as radiações beta de atingirem o detector gama.

Em 1940 J.V. Dunworth publicou uma revisão do estágio de desenvolvimento desta técnica de medida (Du40); porém, as primeiras tentativas de sistematização do método e o estudo de algumas das correções necessárias de serem nêle introduzidas são devidas a J.L. Putman, publicados em 1950 (Pu50) e que constituem um marco na história da Metrologia de Radionuclídeos.

Atualmente o método de coincidência é reconhecido como o de maiores possibilidades para a calibração em atividade de radionuclídeos, tendo-se impôsto , para o seu desenvolvimento na prática, um tipo específico de sistema de detecção, capaz de levar estas possibilidades às suas últimas consequências.

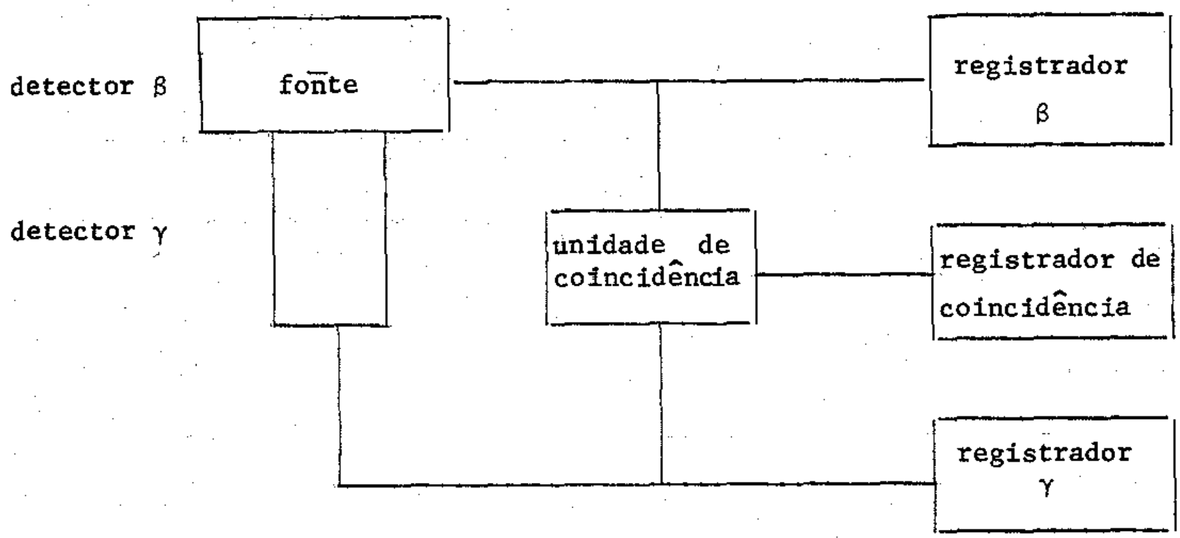
O referido sistema utiliza um detector proporcional de gás em circulação e geometria 4π, denominado "pill-box" ,devido às suas dimensões internas, para a detecção de radiação beta, alfa, raios X ou elétrons Auger, acoplado a um ou dois cristais de iodeto de sódio ativado com tálio para a detecção gama.

A preferência generalizada pelo método de coincidência deve-se principalmente a duas vantagens que apresenta em relação aos demais: possibilidade de precisões mais altas (com exceção de alguns casos particulares) e maior versatilidade quanto aos nuclídeos suscetíveis de serem com êle calibrados. No que se refere à medida de radioisótopos de esquemas de desintegração simples , o método de coincidência para medidas de alta precisão está muito bem estabelecido graças aos estudos teóricos e experimentais de diversos autores (St58) (Ca59) (Ga61) (Br61) (Ga62).

A característica principal do método de coincidência no caso ideal - 1) esquema de desintegração simples, isto é, compôsto por duas radiações simultâneas e de natureza diferente; 2) detectores estáveis no tempo e sensíveis a uma das radiações e insensíveis à outra; 3) fontes pontuais - é que o resultado da medida da atividade independe da eficiência dos detectores e dos parâmetros do esquema de desintegração.

É esta a sua vantagem, em têrmos de êrro sistemático, em relação aos demais métodos, uma vez que a medida da atividade é função apenas das contagens observadas.

Suponha-se uma fonte pontual de um radionuclídeo que se desintegra pela emissão de uma radiação beta seguida por um raio gama, detectados em contadores ideais, beta e gama, respectivamente. As contagens observadas no registrador do canal beta, N_β , do canal gama, N_γ e do canal de coincidência, N_c, serão funções das probabilidades de detecção e de registro $\varepsilon_\beta, \varepsilon_\gamma$ e ε_c, respectivamente. Sendo as probabilidades ε_β e ε_γ independentes ε_c é igual ao produto $\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma$.



Se N_o fôr a atividade da fonte, então:

$$N_\beta = N_o \varepsilon_\beta \quad (a) \qquad \text{com} \qquad 0 \le \varepsilon_\beta \le 1$$

$$N_\gamma = N_o \varepsilon_\gamma \quad (b) \qquad\qquad\qquad 0 \le \varepsilon_\gamma \le 1 \qquad (1)$$

$$N_c = N_o \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma \quad (c)$$

Multiplicando N_β por N_γ e dividindo por N_c tem-se que :

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \qquad (2)$$

Pode-se assim conhecer a atividade N_o sem introduzir as probabilidades ε_β e ε_γ, definidas como eficiência do detector beta e do detector gama, res - pectivamente, para as energias das radiações consideradas. Nêste caso simples, as eficiências também podem ser determinadas pelas fórmulas (1) como:

$$\varepsilon_\beta = \frac{N_c}{N_\gamma}$$

e

$$\varepsilon_\gamma = \frac{N_c}{N_\beta}$$

Por simplicidade, consideramos aqui, como em tôda a extensão dêste trabalho:

1) Sistemas $4\pi\beta(PC)-\gamma$, ainda que muito do que fôr analisado aplique-se a sistemas de coincidência $\beta-\gamma$ em geral.
2) Esquemas de desintegração $\beta-\gamma$, embora as mesmas considerações sejam válidas, em essência, para esquemas do tipo $\alpha-\gamma$ e (raios-X ou elétron Auger)- γ.
3) Implícitas as correções devidas às radiações de fundo, como também ,as correções instrumentais devidas aos tempos mortos nos três canais e ao tempo de resolução do circuito de coincidência.
4) As contagens N_β,N_γeN_c podem ser consideradas em um tempo <u>t</u> qualquer,porém é conveniente colocá-las na unidade de tempo, afim de se obter N_o em desintegrações por segundo.

Quando se passa ao caso real é fundamental que sejam conservadas as características do método de coincidência ideal, evitando a introdução ou minimizando o efeito das eficiências dos detectores e dos parâmetros nucleares.

As exigências de fonte pontual e de detectores estáveis podem ser superadas, considerando-se as eficiências ε_β e ε_γ como integrais das eficiências dos elementos de volume da fonte e como integrais das eficiências no tempo. Desta forma, pode-se mostrar (Pu50) que as fórmulas (1) não se alterarão se:

1) Um dos detectores fôr igualmente sensível a tôdas as partes da fonte . Esta condição verifica-se para o detector gama, levando-se em conta a geometria do arranjo normalmente utilizado e considerando-se desprezível a variação de ponto para ponto da auto-absorção para a radiação gama nas fontes convencionais para êste tipo de medida.
2) Um dos canais (detector e sistema eletrônico) fôr estável. Sendo estabilidade uma das características do detector proporcional de gás em circulação, esta condição é fàcilmente satisfeita.

Quanto ao problema dos detectores apresentarem uma certa sensibilidade para a outra radiação que não aquela para a qual são projetados, nota-se que:

1) A eficiência do contador gama para detecção de radiação beta é nula , uma vez que a parede do detector beta é suficientemente espêssa para

absorver tôda a radiação beta. Resta, ainda, o efeito de bremsstrahlung que só não seria desprezível para radiações beta de alta energia. Entretanto, demonstra-se (Ca59) que mesmo nêste caso a correção de bremsstrahlung é negligenciável, por ser a eficiência do contador $4\pi\beta$(PC) próxima de 1 para energias altas.

2) O detector beta é atravessado por tôdas as radiações gama emitidas pela fonte. Embora o contador 4π proporcional apresente baixa probabilidade de detecção gama, da ordem de décimos de porcento, é necessário levar em conta esta eficiência, que chamaremos de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$. Como as radiações beta e gama são "simultâneas" para uma mesma desintegração, o detetor não as discrimina e, desta forma, as radiações gama podem contribuir para a contagem N_β apenas quando a radiação beta associada não fôr detectada, ou seja, com probabilidade $(1 - \varepsilon_\beta)\varepsilon_{\beta_\gamma}$. Assim, a fórmula (1) (a) modifica-se, ficando:

$$N_\beta = N_o \left[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta)\varepsilon_{\beta_\gamma}\right]$$

e , em consequência, a fórmula (2) passa a ser:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \left[1 - \frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta}\, \varepsilon_{\beta_\gamma}\right]$$

Observa-se aqui que levando-se em conta a eficiência gama do detector beta já surge a necessidade do conhecimento da eficiência beta do detector beta, mesmo no caso de esquemas de desintegração simples. Esta correção, como as que veremos mais adiante devidas à esquemas de desintegração complexos, é função da ineficiência beta $(1 - \varepsilon_\beta)$, ou seja, é a probabilidade de que não seja detectada uma partícula beta no detector beta e de que seja detectada uma radiação gama no mesmo detector . Nêste caso, como nos demais que dependem da ineficiência beta, fica evidente uma das vantagens do uso de detector de geometria 4π e de técnicas de preparação de fontes visando a obtenção de altas eficiências beta para a minimização de tais correções.

Se as radiações gama forem detectadas em ambos os contadores poderão dar origem às coincidências gama-gama com eficiência, que chamaremos de ε_c. Quando se trata de esquemas de desintegração complexos podem ocorrer, ainda, coincidências gama-gama devidas às radiações gama em cascata.

A fórmula (1) (c) passa, então, a ser escrita como:

$$N_c = N_o \left[\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma + (1 - \varepsilon_\beta)\varepsilon_c\right]$$

e, consequentemente, a fórmula (2), desprezando-se o têrmo em $\varepsilon_c/\varepsilon_\gamma$ no denominador, fica:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \cong N_o \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} (\varepsilon_{\beta_\gamma} - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma})\right]$$

Como a radiação gama detectada no contador beta é atenuada, em geral por espalhamento Compton, pode-se tornar desprezível o valor de ε_c através de discriminação adequada de energia no canal gama.

Outro problema a ser considerado nas equações do método de coincidência seria o da correlação angular entre as radiações emitidas. Entretanto, como observa P.J. Campion (Ca59), em virtude de só se verificarem para transições proibidas e crescerem com a energia beta, as correlações mais significativas se darão apenas para eficiências beta tendendo para a unidade e o seu efeito será desprezível.

Assim, para esquemas de desintegração simples, as fórmulas de coincidência, com as devidas correções, são geralmente escritas como:

$$N_\beta = N_o \left[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta)\, \varepsilon_{\beta_\gamma}\right]$$
$$N_\gamma = N_o \varepsilon_\gamma$$
$$N_c = N_o \left[\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma + (1 - \varepsilon_\beta)\varepsilon_c\right]$$

e, no caso mais comum em que se usa discriminação gama conveniente, tornando ε_c desprezível, tem-se:

$$\frac{N_o N_\gamma}{N_c} = N_o \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \varepsilon_{\beta_\gamma}\right]$$

onde a eficiência beta é dada por:

$$\varepsilon_\beta = \frac{N_c}{N_\gamma}$$

Considerando ε_c, que para esquemas simples reduz-se ao produto $\varepsilon_\gamma \varepsilon_{\beta_\gamma}$, tem-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \cong N_o \left[1 + \frac{(1-\varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} (\varepsilon_{\beta_\gamma} - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma}) \right] \quad \text{onde} \quad \varepsilon_\beta = (\frac{N_c}{N\gamma} - \varepsilon_{\beta_\gamma}) \frac{1}{1 - \varepsilon_{\beta_\gamma}}$$

Pode-se também conhecer a eficiência gama

$$\varepsilon_\gamma = \frac{N_c}{N_\beta}$$

que não se modifica com a introdução das correções devidas a $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ e ε_c.

Em síntese, as fórmulas de coincidência para fontes extensas e os detectores utilizados - $4\pi\beta$(PC) e NaI(Tl) - não se modificam em relação às deduzidas para fontes pontuais e detectores ideais, a menos da correção devida à eficiência gama do detector beta. O uso do detector $4\pi\beta$(PC) no canal beta é conveniente em vista, também, do pequeno valor que com êle assume esta correção. Para dar uma idéia de sua ordem de grandeza, observando que $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ é função crescente da energia gama, podemos citar que nos detectores do tipo "pill-box" $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ é inferior a 0,8 % para energias gama próximas de 2 Mev (Me67) e, considerando o caso pouco favorável em que a eficiência beta não é muito alta, por exemplo, 80 %, o valor da correção não ultrapassa 0,15 %.

Os êrros sistemáticos na medida de nuclídeos com esquemas de desintegração simples reduzem-se, em princípio, aos êrros instrumentais, isto é, ao êrro na determinação do tempo de resolução e dos tempos mortos. As imprecisões introduzidas por êles nas respectivas correções são da ordem de 0,05 %. Sendo a correção devida a $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ pequena, o êrro introduzido na medida é também pequeno, inferior a 10^{-3}%. Desta forma, o êrro sistemático total é menor do que 0,1% (Re67a).

Entretanto, a validez das fórmulas fundamentais do método de coincidência para esta ordem de precisão não é simples na prática das medidas. Mesmo no caso de esquemas simples e dos detectores referidos, podem surgir êrros sistemáticos, como foi constatado na "International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of Co^{60}", onde foram verificadas discrepâncias de até 1 % entre os resultados das medidas de atividade realizadas por laboratórios utilizando sistemas $4\pi\beta$(PC)-γ bastante semelhantes (Ro69). Só testes rigorosos podem comprovar que os detectores, assim como, as unidades eletrônicas dos três canais, operam em condições seguras. Particularmente crítico é o canal beta, que trabalha, em geral, em regime extremo de amplificação, eletrônica ou gasosa, onde podem surgir pulsos espúrios dependentes das característi - cas geométricas do detector e do sistema de amplificação (Ba66) (Ca69).

As condições ideais de medida são visualizadas mais claramente, quando se considera todos os tipos de eventos possíveis no sistema de coincidência, isto é, tôdas as combinações possíveis dos registros nos três registradores,beta,gama e coincidência (Th66) o que é sumarizado no quadro abaixo.

Tipo de evento	1	2	3	4	5	6	7	8
Registrador β	+	+	+	+	0	0	0	0
Registrador γ	+	+	0	0	+	+	0	0
Registrador c	+	0	+	0	+	0	+	0

A condição ideal é dada pela redução dos 8 tipos de eventos para apenas 4 , de acôrdo com o quadro

Tipo de evento	1	4	6	8
Registrador β	+	+	0	0
Registrador γ	+	0	+	0
Registrador c	+	0	0	0

ou seja, é necessário que sejam eliminados os eventos 2,3,5 e 7.

Para evitar o evento 2 deve-se garantir que tôdas as desintegrações que dão origem a um registro beta e a um registro gama resultem também em um registro de coincidência. Isto é possível se 1) os pulsos beta e gama estive - rem em fase ao entrarem no circuito de coincidência, para o que, é, em geral, necessário um circuito de atrazo variável em um dos canais, e se 2) o tempo de resolução da unidade de coincidência fôr suficientemente grande para dar margem às flutuações no tempo de um ou de ambos os detectores.

Os eventos 3, 5 e 7 são consequências do tempo de resolução finito que permite o registro de coincidências de radiações não "simultâneas" emitidas em desintegrações consecutivas. Trata-se das coincidências espúrias, para as quais calcula-se a correção em função do tempo de resolução determinado experimentalmente.

O evento 4 inclue a detecção da radiação gama pelo detector beta e o evento 1, as coincidências gama-gama; para os quais são feitas as correções já mecionadas.

É interessante notar, entretanto, que se os eventos 4 e 6 forem causados por pulsos espúrios no detector beta ou gama, a medida da atividade será afetada de êrro para mais. Se o mecanismo do método de coincidência é capaz de compensar o não registro das radiações de uma desintegração, é, por outro lado, incapaz de compensar o registro de uma contagem espúria.

Se a vantagem do método de coincidência é a independência de seus resultados em relação à eficiência dos detectores e aos parâmetros nucleares, a extensão dêste método para esquemas de desintegração complexos deverá manter estas características, a fim de poder ser usado de modo genérico, conservando sua qualidade de alta precisão.

A solução para a eliminação da correção devida à complexidade do esquema de desintegração de um dado nuclídeo ou para a sua determinação em função apenas das contagens observadas, foi sugerida pela primeira vez por Campion et al. (Ca60), em 1960, por analogia à técnica de medida utilizada pelo método do traçador para a calibração de emissores beta puros. Em 1962, H. Houtermans e M. Miguel (Ho62), empregando esta mesma técnica estenderam o método de coincidência, de modo mais ou menos empírico, para casos relativamente simples de esquemas de desintegração complexo. Ainda, em 1962, J.G.V. Taylor (Ta62), aplicando a referida técnica de medida determinou o coeficiente de conversão interna total da transição de 279 Kev do Tl^{203}. Foram, porém, A. Williams e P.J. Campion (Wi63) que, em 1963 fizeram a primeira generalização teórica do método, impondo como condição de validez para sua aplicação altas eficiências de detecção dos grupos beta componentes do esquema de desintegração ou semelhança entre os espectros e as energias máximas dêstes grupos. A.P.Baerg

(Ba66) em 1966, afirmou não serem êstes requisitos necessários ou suficientes para a eliminação da correção de esquema de desintegração e mostrou que com a utilização de detectores de características adequadas, as equações fundamentais de coincidência, colocadas sob nova forma, podem ser usadas no caso mais geral de esquemas de desintegração, fornecendo o valor absoluto da atividade em função apenas das contagens observadas.

A técnica de medida adotada pelos autores citados baseia-se, em essência, na medida de N_β em função da variação do parâmetro de eficiência, N_c/N_γ. A curva obtida, se extrapolada para N_c/N_γ igual à unidade, fornece o valor da atividade sem necessidade do conhecimento da correção para esquema de desintegração. Para um intervalo limitado de variação do parâmetro N_c/N_γ e para espectros semelhantes dos grupos beta ou no caso de haver um grupo beta, ou ainda, de ser possível isolar um deles por discriminação gama, esta função é linear, podendo-se determinar através de seu coeficiente angular a correção para esquema de desintegração. Em alguns casos particulares é importante o conhecimento do valor de tal correção para a determinação de parâmetros nucleares, como o coeficiente de conversão interna total ou a abundância relativa das radiações de desintegração (Ta62a), e de probabilidades de detecção, como a probabilidade de detecção gama do detector beta (Wi63)(Me67).

Anàlogamente ao que ocorre com a correção para $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, a correção para esquema de desintegração anula-se para eficiência total do contador beta tendendo para a unidade. Levando-se em conta o fato de que uma das vantagens do método de coincidências é a de superar o problema da auto-absorção beta que constitue uma das mais graves dificuldades para quase todos os métodos de calibração, a eliminação ou determinação da correção para esquemas de desintegração é fundamental para a obtenção de altas precisões, em qualquer caso que se considere: para grupos beta de baixas energias e, portanto, detectados com baixas eficiências, tornando relativamente grande a correção; para grupos beta de energias altas quando, em consequência, a correção é pequena, porém, sendo o êrro nesta inferior, de pelo menos uma ordem de grandeza, em relação à incerteza na correção de auto-absorção, resulta numa melhoria da mesma ordem na precisão da determinação da atividade.

A importância da fórmula de coincidência generalizada de Baerg reside, principalmente, no fato de que a técnica de coincidência, pode ser utilizada com raras restrições quanto à natureza da desintegração dos radionuclídeos e quando ao intervalo de variação de parâmetro N_c/N_γ . Aplica-se a esquemas envolvendo um ou mais ramos de desintegração alfa, beta negativa ou positiva, por captura eletrônica e transições de de-excitação por emissão de um ou mais raios gama ou por conversão interna. Para a determinação absoluta da atividade não necessita introduzir as abundâncias relativas, os coeficientes de conversão interna, as razões de conversão interna e demais parâmetros nucleares, bem como, as probabilidades de detecção, que no caso de esquemas complexos não podem, em geral, ser conhecidas diretamente, em função apenas das contagens observadas. Com o artifício da introdução de um isótopo traçador conveniente permite, ainda, a calibração de emissores beta puros.

O capítulo I dêste trabalho apresenta um estudo da análise e da dedução da fórmula de coincidência generalizada a partir de hipóteses cuja validez deve ser comprovada para cada sistema de detecção. Estas hipóteses referem-se aos eventos detectados e registrados em cada canal e às relações funcionais entre as eficiências do detector beta para as radiações de desintegração, e, se comprovadas, auxiliam a interpretação dos dados, como ainda, indicam as condições operacionais ótimas, particularmente no que diz respeito à escolha do intervalo de energia gama a ser considerado, para a medida de um radionuclídeo específico.

A fórmula generalizada de coincidência inclue processos que podem ser considerados independentemente e, em consequência, torna-se lícito que o seu teste seja feito por partes, utilizando-se radioisótopos particulares cujos esquemas de desintegração apresentem um outro tipo das complexidades englobadas na fórmula. Em alguns casos êstes testes são estritamente experimentais e, em outros, são levados a efeito comparando-se o valor experimental da correção para esquema de desintegração com o seu valor teórico, considerando-se as constantes nucleares e as eficiências dos detectores.

No último caso, a escolha do radionuclídeo a ser utilizado é difícil, por serem poucos os que, além de apresentarem a natureza de desintegração desejada, reunam as características exigidas pela medida, constantes nucleares bem estabelecidas, meia-vida relativamente longa (da ordem de dezenas de dias), possibilidade de obtenção de altas atividades específicas e alta pureza radioativa.

O presente trabalho propõe-se, no capítulo II, ao primeiro teste da fórmula de coincidência generalizada para o sistema $4\pi\beta$(PE)-γ do IEA, utilizando o Hg^{203} cujo esquema de desintegração pode ser reduzido a um grupo beta seguido por uma transição que se dá por emissão gama e por conversão interna. O método de coincidência generalizado quando particularizado para o Hg^{203} permite a determinação do coeficiente de conversão interna total desta transição,o qual é comparado com valores determinados com técnicas iguais e diferentes à usada nêste trabalho.

As medidas apresentadas no capítulo II são, portanto, parte de um programa mais amplo que visa o teste da fórmula de coincidência generalizada para diversos tipos de esquema de desintegração. Atenderam, também, ao objetivo de verificação da possibilidade de determinação do coeficiente de conversão interna total de outros radionuclídeos no sistema $4\pi\beta$(PC)-γ do IEA, embora seja restrito o número dos que podem ser medidos por êste método, por exigir êle condições especiais quanto ao esquema de desintegração.

CAPÍTULO I

O Problema Geral das Coincidências no Sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$

A fórmula de coincidência generalizada pode ser deduzida para sistemas de coincidência beta-gama genéricos (Ba66). Entretanto, nossas considerações restringir-se-ão ao sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$, para o qual a fórmula adquire seu maior sentido, além de simplificar-se e de tornar mais explícito seu significado.

I.1. Considerações sôbre o efeito de conversão interna na medida de coincidência utilizando o sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$

As radiações emitidas nas transições radioativas que se dão pelo processo de conversão interna contribuem na contagem dos três canais, beta, gama e de coincidência. (Pu50)(Ca59)

Considere-se uma desintegração beta seguida por uma transição apresentando coeficiente de conversão interna total α . Suponha-se que as condições de discriminação de energia no canal gama sejam tais que se registre apenas o fotopico do espectro gama correspondente àquela transição, a fim de evitar a detecção de raios X, resultantes da conversão interna, das radiações de bremsstrahlung, e, com o objetivo também, de eliminar o registro de coincidências gama-gama no canal de coincidência.

Se a atividade da fonte medida for N_0 e a probabilidade de detecção gama, ε_γ, a contagem no canal gama será:

$$N_\gamma = N_o \frac{\varepsilon_\gamma}{1+\alpha} = N_o \varepsilon'_\gamma \qquad \text{onde} \quad \varepsilon'_\gamma = \frac{\varepsilon_\gamma}{1+\alpha}$$

No canal beta a principal contribuição da conversão interna é devida aos eletrons de conversão. Lembrando que êstes eletrons são monoenergéticos e que suas energias são, em geral, da ordem de centenas de Kev , a probabilidade de serem detectados no contador $4\pi\beta$(PC), ε_{c_e}, é muito próxima da unidade. A alta probabilidade de detecção de eletrons com as referidas características explica-se por ser a eficiência intrínseca do detector $4\pi\beta$(PC) maior do que 99,9 % (Me59)(Re67b), e por ser a eficiência extrínseca também muito próxima de 100%, uma vez que a auto-absorção e a absorção no suporte da fonte são desprezíveis para estas energias quando se utiliza as técnicas de preparação de fontes e de filmes para medidas de alta precisão (Mo65).

Sendo ε_β, ε_{ce} e $\frac{\varepsilon_{\beta\gamma}}{1+\alpha}$ as probabilidades de detecção das radiações beta, dos eletrons de conversão e dos raios gama, respectivamente, a contagem no canal beta pode ser escrita como:

$$N_\beta = N_o \left[\varepsilon_\beta + (1-\varepsilon_\beta) \left(\frac{\alpha\, \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1+\alpha} \right) \right] \qquad \text{(I 1)}$$

Entretanto, se a eficiência de detecção do contador beta para os eletrons de conversão fôr menor do que a unidade, poderão ser nêle detectados os eletrons Auger e os raios-X que se seguem à emissão dos eletrons de conversão.

Nêste caso ε_{ce} da fórmula (I 1) deve ser substituído por:

$$\sum_i \alpha_i \left[\varepsilon_{ce_i} + (1-\varepsilon_{ce_i})\varepsilon_{(X,A)_i} \right] \quad \text{sendo} \quad \sum_i \alpha_i = \alpha \qquad \text{(I 2)}$$

para i = K,L,M...

A necessidade da introdução dos coeficientes de conversão interna para cada camada na fórmula (I 2) deve-se ao fato de que as eficiências de detecção para os eletrons de conversão das diversas camadas, ε_{ce_i}, são diferentes, por serem êles de diferentes energias. A última parcela desta expressão leva em conta a probabilidade de detecção de raios-X ou eletrons Auger, quando os eletrons de conversão associados não forem detectados.

A fórmula (I 1) passa então a ser escrita como:

$$N_\beta = N_o \left\{ \varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \frac{\varepsilon_{\beta_\gamma} + \sum_i \alpha_i \left[\varepsilon_{ce_i} + (1-\varepsilon_{ce_i})\varepsilon_{(X,A)_i}\right]}{1 + \alpha} \right\}$$

sendo $\sum_i \alpha_i = \alpha$

para $i = K,L,M...$

Se a medida no canal gama fôr realizada no fotopico, a contagem no canal de coincidência será:

$$N_c = N_o \varepsilon_\beta \frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} = N_o \varepsilon_\beta \varepsilon'_\gamma$$

I.2. Fórmulas básicas do método de coincidência generalizado.

Consideremos um esquema de desintegração com n grupos beta, sendo a_r a abundância relativa (branching ratio) do résimo grupo e ε_{β_r} a eficiência do detector beta para êste grupo. Pelo menos um dos grupos beta deve ser seguido por uma ou mais radiações gama, γ_{r_s}, detectadas no contador gama com eficiência $\varepsilon'_{\gamma_{rs}} = \frac{\varepsilon_{\gamma_{rs}}}{1 + \alpha_{rs}}$, onde α_{r_s} é o coeficiente de conversão interna total para a transição do sésimo gama associado ao résimo grupo beta. Designemos por p_r o número de radiações gama associadas à résima desintegração beta e, por b_{rs}, sua abundância relativa.

Com esta notação, as fórmulas básicas de coincidência passarão a ser:

$$N_\beta = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \left[\varepsilon_r + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{p_r} b_{r_s} \frac{(\alpha_s \varepsilon_{ce_s} + \varepsilon_{\beta\gamma_s})_r}{(1 + \alpha)_{s\,r}} \right] \quad \text{(a)}$$

(I 3)
$$N_\gamma = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \sum_{s=1}^{p_r} b_{r_s} \varepsilon'_{\gamma_{r_s}} \quad \text{(b)}$$

$$N_c = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \varepsilon_{\beta_r} \left[\sum_{s=1}^{p_r} b_{r_s} \varepsilon'_{\gamma_{r_s}} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \sum_{s=1}^{p_r} b_{r_s} \varepsilon_{c_{r_s}} \right] \quad \text{(c)}$$

Observe-se que para esquemas de desintegração em que um dos grupos beta dei xa o núcleo resultante no estado fundamental, ou quando se discrimina as radia ções gama associadas a um dos grupos beta, deve-se considerar êstes grupos se - guidos por raios gama detectados com eficiência nula. No caso da eficiência de detecção para eletrons de conversão ser diferente da unidade, deve-se substi - tuir $\alpha\varepsilon_{ce}$ por $\Sigma\alpha_i \left[\varepsilon_{ce_i} + (1 - \varepsilon_{ce_i})\varepsilon_{(X,A)}\right]_r$, como foi visto em I 1.

Para simplificar as fórmulas (I 3) pode-se omitir as somatórias em s, desde que as mesmas sejam consideradas implícitas, bem como, as abundâncias relativas b_{rs}, nos fatôres em ε'_γ , ε_c e $(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma})$, quando houver mais de uma radiação gama seguindo uma desintegração beta.

Com apenas as somatórias em r as fórmulas (I 3) ficam (Ba66):

$$N_\beta = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \frac{(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma})_r}{(1 + \alpha)_r}\right] \quad \text{(a)}$$

$$N_\gamma = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \varepsilon'_{\gamma_r} \quad \text{(b)} \qquad \text{(I 4)}$$

$$N_c = N_o \sum_{r=1}^{n} a_r \left[\varepsilon_{\beta_r}\varepsilon'_{\gamma_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})\, \varepsilon_{c_r}\right] \quad \text{(c)}$$

Lembrando ainda que as contagens N_β, N_γ e N_c incluem as correções para radia - ção de fundo, tempo morto e tempo de resolução, temos que:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = \frac{N_o \Sigma a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma})_r / (1 + \alpha)_r\right] N_o \Sigma a_r \varepsilon'_{\gamma r}}{N_o \Sigma a_r \left[\varepsilon_{\beta_r}\varepsilon'_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})\varepsilon_{c_r}\right]} \quad \text{(I 5)}$$

e, portanto, a atividade N_o seria dada por:

$$N_o = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \cdot \frac{\Sigma a_r \left[\varepsilon_{\beta_r}\varepsilon'_{\gamma_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})\varepsilon_{c_r}\right]}{\Sigma a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})(\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma})_r/(1 + \alpha)_r\right] \Sigma a_r \varepsilon'_{\gamma r}} \quad \text{(I 6)}$$

e, N_c/N_γ, que chamaremos parâmetro de eficiência, por:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \frac{\Sigma a_r \left[\varepsilon_{\beta_r}\varepsilon'_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r})\varepsilon_{c_r}\right]}{\Sigma\, a_r \varepsilon'_{\gamma r}} \qquad \text{(I 6a)}$$

Fica evidente por estas fórmulas que não se pode determinar a atividade N_o sem o conhecimento prévio das constantes do esquema de desintegração, como as abundâncias relativas e os coeficientes de conversão interna, e das probabilidades de detecção ε_{β_r}, $\varepsilon_{\gamma r}$, $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, ε_{ce}, ε_c , a menos que os têrmos em $(1-\varepsilon_{\beta_r})$ sejam nulos, e, além disto, que um dos detectores seja igualmente sensível a tôdas as energias da radiação que detecta (Pu50), afim de que ε_β ou ε_γ possa ser tomado como constante nas somatórias, reduzindo o fator de correção para esquema de desintegração na fórmula (I 6) à unidade.

Estas duas condições, entretanto, difìcilmente se verificam simultâneamente. A primeira delas exige que as energias máximas de todos os grupos beta sejam altas para que a auto-absorção seja desprezível (para energias máximas superiores a 1,5 Mev a auto-absorção pode ser reduzida a menos do que 1%) ou que as probabilidades $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, ε_{cr} e ε_{ce} sejam ao mesmo tempo nulas ou muito próximas de zero.

A segunda condição, não é satisfeita, pois a eficiência de detecção beta é função da energia beta, particularmente no que se refere a auto-absorção; e o sistema de cintilação , como se sabe, tem resposta dependente da energia da radiação incidente.

Pelos motivos expostos, A. Williams e P.J. Campion (Wi63) acrescentaram às hipóteses contidas nas fórmulas (I 4) novas hipóteses, e, utilizando a técnica da extrapolação, obtiveram experimentalmente para alguns nuclídeos, o valor da correção para esquemas de desintegração, que lhes permitiu determinar absolutamente a atividade em função apenas das contagens observadas. A.Baerg (Ba66) substituiu as restrições quanto às características do esquema de desintegração, impostas no trabalho dos autores citados, por condições que são sobretudo de ordem instrumental e operacional, conforme veremos a seguir. Desenvolveremos aqui o formalismo cujas linhas gerais foram apresentadas por Baerg no referido trabalho.

I.3. Condições e dedução da fórmula de coincidência generalizada

A possibilidade da utilização da técnica de extrapolação no método de coincidência generalizado depende da existência de uma relação funcional entre a contagem do detector beta, N_β , e o parâmetro de eficiência, N_c/N_γ, tal que N_β tenda para a atividade da fonte, N_o, quando o parâmetro de eficiência tender à unidade, ou seja, que

$$N_\beta \longrightarrow N_o \quad \text{quando} \quad N_c/N_\gamma \longrightarrow 1$$

Segundo Baerg são duas as condições para a existência de uma função que relacione N_β e N_c/N_γ obedecendo ao limite acima:

1) é necessário que, para um intervalo de valôres experimentais do parâmetro de eficiência N_c/N_γ, as eficiências de detecção para os diferentes grupos beta, ε_{β_r}, sejam interrelacionadas de tal forma que cada qual possa ser biunivocamente definida como função f_r de uma dentre elas, ε_{β_s}, escolhida arbitràriamente. Além disso, é necessário que a validez dessas funções estenda-se para eficiências unitárias, ou seja, que as funções f_r tendam para a unidade quando uma das eficiências beta, ε_{β_s}, tender para êste valor. Simbòlicamente esta condição pode ser escrita como:

$$\varepsilon_{\beta_r} = f_r(\varepsilon_{\beta_s}) \quad \text{onde} \quad f_r \longrightarrow 1 \quad \text{quando} \quad \varepsilon_{\beta_s} \longrightarrow 1$$

$$\text{para } r = 1,2,\ldots n \qquad \text{(I 7)}$$

2) é necessário que os valores das probabilidades de detecção ε_{γ_r},$\varepsilon_{\beta\gamma_r}$, ε_{c_r} e ε_{ce_r} permaneçam constantes no intervalo de variação N_c/N_γ ou sejam definíveis em têrmos de ε_{β_r}.

Estas condições, particularmente a primeira, dependem crìticamente das características do detector beta, sendo que no caso do $4\pi\beta$(PC) tal dependência diz respeito ao seu projeto e às condições de operação.

Considerando que os espectros beta são contínuos para energias que vão de zero até uma energia máxima, a tendência simultânea das eficiências de todos os grupos beta para a unidade só se verificará se a discriminação de baixas energias constituir-se no único parâmetro responsável pela variação das eficiên cias do detector beta. A discriminação de altas energias, em particular, pode não afetar todos os grupos beta, impedindo que os ε_{β_r} relacionem-se biunìvocamente.

Portanto, deve-se proceder à variação de N_c/N_γ, variando-se as eficiências dos grupos beta ùnicamente por discriminação de baixas energias, o que só pode ser realizado na prática(quando se utiliza detectores proporcionais em pressão atmosférica, para os quais o espectro de pulsos de um dado grupo beta não corresponde ao seu espectro de energia)por absorção beta externa ou interna, isto é, acrescentando-se absorvedores convenientes ou carregador às fontes medidas.

Pelo método do traçador verificou-se (Ba64)(Mo69) que ambas as formas de absorção são equivalentes para êste particular objetivo; entretanto, devido à maior possibilidade de contrôle da variação de N_c/N_γ e à maior simplicidade da absorção externa, é esta a mais frequentemente utilizada.

Tôdas as características do detector que permitirem a discriminação de altas energias impedirão que se verifique a primeira condição, afetando de êrro o valor extrapolado da atividade.

O mesmo ocorre se outro fator, além da absorção beta, for responsável pela ineficiência beta, como demonstraram teórica e experimentalmente A.Williams et al.(Wi68), justificando a afirmação de Baerg nêste sentido. Por êste motivo a probabilidade de resposta do detector deve ser igual a 1 e sua geometria exatamente 4π , o que é conseguido com detectores projetados especìficamente para a satisfação destas exigências e operando em condições rigorosamente estipuladas.

A segunda condição, exigindo que os valores de ε_{γ_r},$\varepsilon\beta_{\gamma\, r}$, ε_{c_r} e ε_{ce_r}, permaneçam constantes no intervalo de variação de N_c/N_γ, é satisfeita com maior facilidade experimental, a menos que a energia de uma das radiações gama de intensidade significativa seja muito menor do que as energias dos grupos beta. Nêste caso, quando da variação do parâmetro N_c/N_γ por absorção beta, pode ocorrer discriminação gama, causando um decréscimo nos valores de ε_{γ_r} e de $\varepsilon_{\beta_{\gamma r}}$. Entretanto, mesmo nesta situação, o efeito é pequeno, uma vez que a variação de ε_γ em função de N_c/N_γ é bastante lenta, e a de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, por ser baixo o seu valor no detector $4\pi\beta$(PC), é em geral, desprezível, o mesmo verificando-se para ε_c. No que se refere à variação da eficiência do detector beta para os eletrons de conversão, ε_{ce}, é possível selecionar um intervalo conveniente de variação de N_c/N_γ, se as energias dos grupos beta não forem muito altas , tal que nêle, os elétrons monoenergéticos não sofram discriminação. No caso de grupos beta e transições gama de energias altas, os coeficientes de conversão interna são, como se sabe, quase sempre, desprezíveis.

Satisfeitas as duas condições acima, procedemos à dedução da fórmula de coincidência generalizada, segundo o formalismo de Baerg,referindo-nos às fórmulas (I 4) para as contagens nos três canais.

Se o sistema de detecção gama fôr estável (o que não é um requisito estritamente necessário, mas simplificador) a relação entre a eficiência para a detecção da radiação gama associada à um dos grupos beta e a eficiência para o total das radiações gama medidas, k_r, é constante para um dado valor de N_c/N_γ, ou seja:

$$k_r = \frac{a_r \varepsilon'_{\gamma r}}{\sum_r a_r \varepsilon'_{\gamma r}} \qquad \text{sendo} \qquad \sum_{r=1}^{n} k_r = 1 \qquad \text{(I 8)}$$

A partir da equação (I6a) e das fórmulas (I 7) e (I 8) pode-se calcular o valor do parâmetro N_c/N_γ em função de ε_{β_s}, obtendo-se:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = 1 - \Sigma\, k'_r \left[1 - f_r(\varepsilon_{\beta_s})\right] \longrightarrow 1 \quad \text{quando} \quad \varepsilon_{\beta_s} \longrightarrow 1 \,, \qquad \text{(I 9)}$$

onde $k'_r = k_r\left(1 - \frac{\varepsilon_{c_r}}{\varepsilon_{\gamma r}}\right)$

Pela condição 1) tem-se que:

$$f_r(\varepsilon_{\beta_s}) \longrightarrow 1 \qquad \text{quando} \quad \varepsilon_{\beta_s} \longrightarrow 1 \quad \text{para } r = 1,2,\ldots n$$

e, consequentemente, na fórmula (I 9):

$$\frac{N_c}{N_\gamma} \longrightarrow 1 \qquad \text{quando} \qquad \varepsilon_{\beta_s} \longrightarrow 1 \qquad ,$$

ou seja, o parâmetro de eficiência tende à unidade quando uma das eficiências beta, ε_{β_s}, tender para um.

Considerando que ε_{c_r} é pequeno em face à $\varepsilon_{\gamma r}$, e que ε_{γ_r} e ε_{c_r} são constantes ou variam muito lentamente com ε_{β_r}, então, k'_r é também constante ou varia lentamente com ε_{β_r}. Em ambos os casos, observadas as condições de validez das fórmulas $\varepsilon_{\beta_r} = f_r(\varepsilon_{\beta_s})$, a equação (I 9) define implìcitamente ε_{β_s} como função ϕ de N_c/N_γ e, os ε_{β_r}, por sua vez, ficarão definidos como funções Ψ_r de N_c/N_γ, sendo f_r, ϕ e Ψ_r monótonas num intervalo selecionado de variação de N_c/N_γ. Simbòlicamente, pode-se escrever:

$$\varepsilon_{\beta_r} = f_r(\varepsilon_{\beta_s}) \qquad \text{onde} \quad \varepsilon_{\beta_s} = \phi(N_c/N_\gamma) \quad \text{portanto}$$

$$\varepsilon_{\beta_r} = f_r \left[\phi\,(N_c/N_\gamma)\right] = \Psi_r\,(N_c/N_\gamma)$$

onde

$$\varepsilon_{\beta_r},\ f_r\ ,\ \Psi_r \longrightarrow 1 \qquad \text{quando} \quad N_c/N_\gamma \longrightarrow 1 \qquad \text{(I 10)}$$

$$r = 1,2,\ldots\, n$$

Uma vez definidos os ε_{β_r} como funções biunívocas de N_c/N_γ, pode-se reescrever a fórmula (I 4) (a) para a contagem no canal beta, como:

$$N_\beta = N_o \left\{ \sum_r a_r b_r + \sum_r a_r\, \Psi_r(N_c/N_\gamma) \left[1 - b_r\right] \right\} \qquad \text{(I 11)}$$

onde

$$b_r = \left(\frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r$$

Das considerações feitas relativamente a ε_{ce} e $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ decorre que b_r é constante ou varia muito lentamente com N_c/N_γ e, portanto, N_β resulta simplesmente como uma função F do parâmetro de eficiência N_c/N_γ, tal que:

$$\boxed{N_\beta = N_o\ F(N_c/N_\gamma)} \qquad \text{FÓRMULA DE COINCIDÊNCIA GENERALIZADA}$$

(I 12)

Levando em conta os limites em (I 10) e considerando que $\sum_r a_r = 1$, observa--se pelas fórmulas (I 11) e (I 12) que

$$F \longrightarrow 1 \qquad e \quad N_\beta \longrightarrow N_o \qquad \text{quando} \quad N_c/N_\gamma \longrightarrow 1$$

Para se conhecer o valor da atividade N_o, determina-se experimentalmente a função de eficiência F, variando-se o parâmetro de eficiência N_c/N_γ, através da absorção das partículas beta em filmes finos ou fôlhas de alumínio, em um intervalo para o qual sejam válidas as fórmulas (I 7) e (I 9). Êste, que depende sobretudo da relação entre as energias médias e a forma dos espectros dos grupos beta, particularmente em sua parte inicial, ou da energia dos elétrons de conversão, é, em geral, suficientemente grande para que se possa obter um número razoável de pontos definindo a curva. Procede-se, em seguida, a um ajuste polinomial dos pontos (Ad67), extrapolando-se para $N_c/N\gamma = 1$ onde $N_\beta = N_o$.

Desta forma obtém-se o valor absoluto da atividade em função apenas das contagens observadas, sem necessidade de introduzir os parâmetros nucleares e as diversas probabilidades de detecção.

Por êste método é, também, possível conhecer a eficiência beta total, isto é, para a detecção das radiações emitidas por todos os grupos beta, que para cada valor do parâmetro N_c/N_γ é dada pela própria função F, uma vez determinada experimentalmente sua forma. As eficiências dos grupos beta individuais só podem ser determinadas, se fôr possível isolar as radiações gama a êles associadas e se a eficiência para a detecção gama-gama fôr desprezível.

I.4. Forma prática da fórmula de coincidência generalizada

A fórmula de coincidência generalizada pode ser posta em forma mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica. Usando-se $N_\beta N_\gamma/N_c$ como variável dependente e $(1 - N_c/N_\gamma) \,/\, N_c/N_\gamma$ como parâmetro variável, obtém-se uma função de eficiência, G, cuja variação é mais lenta do que a da função F acima referida.

Utilizando-se a fórmula (I 9), o novo parâmetro de eficiência pode ser escrito como:

$$\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} = \frac{1}{1 - \sum_r k'_r \left[1 - f_r(\varepsilon_{\beta_s})\right]} - 1 \qquad \text{(I 13)}$$

e, portanto,

$$\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \longrightarrow 0 \qquad \text{quando} \qquad \varepsilon_{\beta_r} = f_r(\varepsilon_{\beta_s}) \longrightarrow 1$$

para r = 1, 2, ... n

Por considerações análogas às feitas em I.3 para a fórmula (I 9), os ε_{β_r} podem ser definidos, pela fórmula (I 13), como funções monótonas de $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$, ou seja,

$$\varepsilon_{\beta_r} = \Psi'_r\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right) \qquad \text{onde } \Psi'_r \longrightarrow 1 \quad \text{quando} \quad \frac{1-N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \longrightarrow 0$$

para r = 1, 2, ... n

Substituindo $\Psi_r(N_c/N_\gamma)$ por $\Psi'_r\left(\frac{1-N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right)$ na fórmula (I 11) e multiplicando-a pela expressão de N_c/N_γ em (I 9), tem-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = \frac{N_o\left[\sum_r b_r a_r + \sum_r (1 - b_r) a_r \Psi'_r\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right)\right]}{1 - \sum_r k'_r\left[1 - \Psi'_r\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right)\right]} \qquad \text{(I 14)}$$

Com as mesmas considerações feitas para a dedução da fórmula (I 12) a respeito de b_r e, ainda, com aquelas feitas para k'_r, isto é, para ε_{γ_r} e ε_{c_r}, na fórmula (I 9), conclui-se que $N_\beta N_\gamma/N_c$ pode ser tomada como uma função G de $(1 - N_c/N_\gamma)\, N_c/N_\gamma$, ou seja:

$$\text{(I 15)} \qquad \boxed{\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o G\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma}\right)}$$

FÓRMULA DE COINCIDÊNCIA GENERALIZADA

onde $G \longrightarrow 1$ e $N_\beta N_\gamma/N_c \longrightarrow N_o$ quando $(1-N_c/N_\gamma)\ /\ N_c/N_\gamma \longrightarrow 0$

O procedimento para a determinação da atividade pela fórmula (I 15) é o mesmo descrito em I.3 relativamente à função F.

Se fôr possível conhecer as funções f_r, ou seja, a relação entre as eficiências dos grupos beta, e, portanto, tornar explícitas as funções Ψ'_r, pode-se estimar pela fórmula (I 14) a correção para o esquema de desintegração. Uma análise desta correção, como veremos ao particularizarmos a fórmula generalizada de coincidência, permite o conhecimento das condições experimentais que a tornam mínima, diminuindo ou mesmo, eliminando o êrro devido a extrapolação na determinação da atividade.

I.5. Particularização da fórmula generalizada de coincidência para eficiências dos grupos beta linearmente relacionadas

As experiências realizadas para o estabelecimento do método do traçador para a calibração de emissores beta puros (Ca60) (Me60) (Ba64) mostraram que as eficiências de grupos beta de energias médias diferindo de fatôres não superiores a 2 relacionam-se linearmente, no intervalo de variação do parâmetro de eficiência que vai de 100% até cêrca de 75%. A. Williams (Wi64) demonstrou por considerações teóricas dos espectros beta que, para êstes casos, o êrro no valor extrapolado devido a suposição de linearidade é da ordem de 1%, e comprovou experimentalmente seus cálculos para os grupos beta de alguns radionuclídeos.

À medida que aumenta a diferença entre as energias médias dos grupos beta, o comportamento linear das funções f_r, restringe-se a intervalos cada vez menores, e, em casos extremos, desvia -se bastante da linearidade.

Para grupos beta tais que suas eficiências possam ser consideradas linearmente interrelacionadas, as fórmulas de coincidência generalizada de Baerg podem ser particularizadas, atribuindo às funções f_r uma forma linear conveniente. É, ainda, o método do traçador que sugere para os ε_{β_r} a seguinte forma (Wi63) (Ba66):

$$\varepsilon_{\beta_r} = 1 - C_r(1 - \varepsilon_{\beta_s}) \qquad \text{onde} \quad C_r \simeq \text{cte} \quad \text{para } r = 1,2,\ldots n \tag{I 16}$$

ou seja, as ineficiências beta $(1 - \varepsilon_{\beta_r})$ são aproximadamente proporcionais,tendo como constante de proporcionalidade C_r cujo valor pode ser estimado por alto pela relação entre as energias médias dos grupos beta considerados (Ca60).

Substituindo o valor de ε_{β_r} na fórmula (I 4) (a) pelo seu valor dado pela expressão (I 16), e utilizando alguns artifícios matemáticos, tem-se:

$$N_\beta = N_o \left[1 - K(1 - \frac{N_c}{N_\gamma}) \right]$$ FÓRMULA DE COINCIDÊNCIA GENERALIZADA PARA EFICIÊNCIAS BETA LINEARMENTE RELACIONADAS (I 17)

onde

$$K = \sum_r \frac{a_r C_r}{k} \left(1 - \frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}\right)_r \qquad (I\ 18)$$

e

$$k = \sum_r k_r C_r \left(1 - \frac{\varepsilon_{c_r}}{\varepsilon_{\gamma r}}\right) \qquad (I\ 19)$$

Se $\varepsilon_\gamma, \varepsilon_c, \varepsilon_{\beta_\gamma}$ e ε_{ce} puderem ser considerados fixos quando da variação de N_c/N_γ, K é constante e pela fórmula (I 17) verifica-se que

$$N_\beta \longrightarrow N_o \qquad \text{quando} \qquad N_c/N_\gamma \longrightarrow 1$$

Variando-se $(1 - N_c/N_\gamma)$ obtém-se uma reta cujo coeficiente angular dará o valor de $N_o K$ e cuja ordenada inicial fornecerá o valor absoluto da atividade , N_o.

Analogamente ao que ocorre no caso geral, e, em particular,para a determinação do valor de K, é conveniente o uso da função que relaciona $N_\beta N_\gamma / N_c$ com $(1 - N_c/N_\gamma) / N_c/N_\gamma$. Dividindo-se a fórmula (I 17) por N_c/N_γ obtém- se a forma explícita da função G nêste caso particular, dada pela expressão entre os colchetes da fórmula abaixo:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \left[1 + (1 - K)\left(\frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right) \right]$$ FÓRMULA DE COINCIDÊNCIA GENERALIZADA PARA EFICIÊNCIAS BETA LINEARMENTE RELACIONADAS (I 20)

onde com as mesmas considerações feitas para a fórmula (I 15)

$$N_\beta N_\gamma / N_c \longrightarrow N_o \qquad \text{quando } (1 - N_c/N_\gamma) \,/\, N_c/N_\gamma \longrightarrow 0$$

Determina-se, desta forma, o valor da constante da correção para esquema de desintegração, K, para um dado sistema de detecção e um dado radionuclídeo. Conhecendo-se o valor de K, e portanto, da expressão que multiplica N_o na fórmula (I 20) para um determinado valor de N_c/N_γ, pode-se no caso de eficiências beta linearmente relacionadas, utilizar o método de coincidência convencional, acrescentando-lhe o fator de correção para esquema de desintegração.

A determinação da atividade por extrapolação no método de coincidência generalizado exige várias medidas para a obtenção da atividade de uma fonte, afim de que seja grande o número de pontos determinando a reta e, portanto, pequeno o êrro no valor extrapolado. Embora mais lenta e trabalhosa a determinação de N_o por êste método é aconselhável para medidas de alta precisão, particularmente quando for possível escolher condições experimentais, tais que a inclinação da reta seja mínima.

Embora o método de coincidência generalizado não utilize o valor de K para a determinação da atividade, é útil explicitar sua forma para a análise e o estabelecimento das condições de operação para um dado radionuclídeo.

A constante da correção para esquemas de desintegração para eficiências beta linearmente interrelacionadas é dada pelas fórmulas (I 18), (I 19)e(I 8), resultando em :

$$K = \sum_r \frac{a_r C_r \left(1 - \dfrac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha}\right)_r}{\sum_r \dfrac{a_r \varepsilon_{\gamma_r} C_r}{\sum_r a_r \varepsilon_{\gamma_r}} \left(1 - \dfrac{\varepsilon_{c_r}}{\varepsilon_{\gamma_r}}\right)}$$ CORREÇÃO PARA ESQUEMAS DE DESINTEGRAÇÃO COM EFICIÊNCIAS BETA LINEARMENTE RELACIONADAS (I 21)

Pela fórmula (I 21) pode-se estimar as condições de operação que minimizam o fator (1-K), ou seja, o coeficiente angular da reta, tornando-a o mais possível paralela ao eixo das abcissas, e desta forma, tendendo a eliminar a necessidade de extrapolação ou a diminuir o êrro nesta.

Como era de se esperar a minimização de (1-K) depende da seleção das radiações gama a serem incluídas na medida, verificando-se, em geral, quando se inclue aquelas associadas aos grupos beta de maior abundância relativa.

Os eletrons de conversão, por outro lado, impõem um limite inferior para esta correção, o que não ocorreria se fôsse possível descriminá-los por absorção; entretanto, tendo em vista a ordem de grandeza de suas energias, isto acarretaria em um decréscimo de N_c/N_γ e, conseqüentemente, o intervalo de extrapolação seria aumentado, crescendo a probabilidade de introdução de êrro sistemático no valor extrapolado.

A fórmula (I 21) permite a determinação da abundância relativa e do coeficiente de conversão interna total de radionuclídeos apresentando esquemas de desintegração relativamente simples e de características convenientes. Constitue também o método mais preciso para a determinação da eficiência gama do detector beta, que com a utilização de uma série de radioisótopos adequados e emissores de radiações gama de diferentes energias, torna possível o levantamento da curva de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ versus E_γ(E_γ = energia gama), que é da maior utilidade nos problemas de medida absoluta de atividade (Wi63) (Me67).

O conhecimento da forma da correção para esquemas de desintegração para eficiências beta linearmente relacionadas, ou em outros casos em que as funções f_r possam ser explicitadas, é útil, também, para a estimativa desta correção quando não é de interêsse ou não é possível sua determinação experimental, como por exemplo, para radionuclídeos de meia vida curta.

O caso particular de eficiências linearmente relacionadas tende ao caso geral da função G, para espectros beta menos semelhantes e para valôres do parâmetro de eficiência, em geral, inferiores a 75 %. Nêstes casos ajustando-se a curva por polinômios ortogonais e aplicando-se testes estatísticos para a verificação da melhor ordem polinomial de ajuste (Ad67), verifica-se que os têrmos de segundo ou de terceiro grau tornam-se significativos. Naturalmente a ordem polinomial é limitada superiormente pelos êrros estatísticos dos pon -

tos da curva.

Concluimos, portanto, que a técnica de medida de coincidência utilizando a variação do parâmetro de eficiência, conserva a qualidade fundamental do método de coincidência, isto é, a obtenção da atividade em função apenas das contagens observadas, dispensando inclusive o conhecimento de $\varepsilon_{\beta\gamma}$, necessário ao método de coincidência convencional mesmo no caso de esquemas de desintegração simples.

Como foi dito na introdução, a fórmula generalizada de coincidência, embora tenha sido deduzida para esquemas de desintegração do tipo beta-gama aplica-se aos do tipo alfa-gama, captura eletrônica-gama, pósitron-gama, com pequenas modificações e, algumas restrições, no caso em que a desintegração se dá por radiações de natureza diferente, como por exemplo, por emissão de pósitrons e captura eletrônica. Aplica-se, ainda, para a calibração de emissôres beta puros com o artifício da incorporação de um emissor beta-gama, de atividade prèviamente determinada, na fonte do radionuclídeo a ser calibrado,ou seja, pelo método do traçador.

A fórmula de coincidência generalizada deve ser testada para cada sistema de detecção e para os diversos tipos de esquema de desintegração. No caso de esquemas apresentando vários grupos beta, todos êles associados a uma ou mais radiações gama, pode-se realizar medidas diferindo entre si pela seleção dos fotopicos nelas incluídos, utilizando-se para cada qual uma condição diferente de janela do analisador monocanal gama. Obtém-se desta forma diferentes funções G, que convergirão tôdas para a unidade quando o parâmetro de eficiência tender a um, se forem válidas as hipóteses assumidas, particularmente quanto à tendência simultânea das funções f_r para a unidade. Para esquemas menos complexos, particularmente se um dos grupos beta vai para o estado fundamental, êste teste pode ser levado a efeito acrescentando-se um nuclídeo "traçador", afim de que seja possível obter outras funções G, que deverão igualmente tender para a unidade quando o N_c/N_γ tender para um.

Outros testes específicos para o tipo de complexidade que se quer verificar podem ser realizados, sendo dos mais diretos o da comparação do valor de um parâmetro nuclear determinado pela fórmula de coincidência generalizada,com valôres bem estabelecidos encontrados na literatura,quando o esquema de desintegração e as características do radioisótopo,citadas na introdução, o permitirem. Êste tipo de verificação, que será tratado no capítulo II, exige para a sua realização nuclídeos adequados, de esquemas de desintegração relativa - mente simples, afim de que não sejam acumuladas incertezas devido aos valôres dos parâmetros nucleares e das probabilidades de detecção, o que tornará o teste não significativo e o que ocorrerá fàcilmente, pois o valor da correção para esquema de desintegração é, em geral, bastante pequeno. Nos casos menos favoráveis, como o do Au^{198} K é da ordem de 0,95, o que implica para fontes de eficiência beta total de 90%, em uma alteração no valor da atividade de cêrca de 5 %; em casos favoráveis, como o do I^{131}, nas condições experimentais de minimização desta correção, tem-se $K \approx 0,995$, afetando o valor da atividade de cêrca de 0,5 %, para fontes com a mesma eficiência total de 90 %.

I.6. Êrros sistemáticos na medida absoluta da atividade pelo método de coincidência generalizado utilizando o sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$

A medida absoluta da atividade pelo método de coincidência generalizado é afetada pelos êrros sistemáticos que ocorrem no método de coincidência convencional para esquemas de desintegração simples e, além dêstes, pelo êrro devido à extrapolação, principalmente para nuclídeos que se desintegram pela emissão de mais de um grupo beta.

Os êrros sistemáticos são portanto de dois tipos: os que afetam cada ponto da curva e o de extrapolação da curva.

Os primeiros podem ser divididos em:

1) êrros instrumentais relativos às constantes eletrônicas
   a) na determinação do tempo de resolução do circuito de coincidência
   b) na determinação dos tempos mortos fixados eletrônicamente
   c) nos tempos de contagem

2) êrros instrumentais devido às características do detector beta
   a) probabilidade de resposta do detector diferente de 1
   b) geometria do detector menor do que 4π
   c) pulsos espúrios

3) êrros devido às características do nuclídeo
   a) na constante de desintegração
   b) nas contagens devido às impurezas radioquímicas.

Os êrros do item 1) são fàcilmente estimados e, normalmente, não introduzem na medida da atividade êrros sistemáticos maiores do que 0,05 %.

Quanto aos êrros do item 2) vários autores têm, nos últimos anos, se preocupado com suas causas, procurando eliminá-los ou estimá-los, porém a solução definitiva para êstes problemas ainda não foi encontrada. Atualmente, o que se consegue é a minimização dêstes êrros com a utilização de detectores de projeto elaborados,visando a eliminação dos mesmos, e de técnicas experimentais aperfeiçoadas com o mesmo objetivo. Deve-se observar, entretanto, que a menos dos pulsos espúrios, cuja existência pode ser verificada por meio de testes relativos às contagens no canal beta e no canal de coincidência, os êrros do item 2) devido à geometria e à probabilidade de resposta do detector,só intervêm no caso de esquemas de desintegração envolvendo mais de um ramo beta.

Quanto ao êrro sistemático devido à extrapolação adota-se sempre o critério de minimização da inclinação da curva de eficiência e do intervalo de extrapolação, para que êste êrro atinja ordens de grandeza não superiores a dos demais introduzidos na medida absoluta da atividade. É,também, para esquemas de desintegração envolvendo mais de um grupo beta que o êrro devido à extrapolação pode constituir-se em séria dificuldade para a obtenção de precisões da ordem de 99 %.

Para a calibração de soluções radioativas deve-se ainda levar em conta os êrros sistemáticos devido à determinação da massa da alíquota e do fator de diluição (Mo67b).

É lícito reduzir os êrros estatísticos em cada ponto da curva aos êrros estatísticos de contagem, os quais são limitados inferiormente pela estatística da desintegração radioativa. Os tempos de contagem normalmente usados são tais que os mantém da ordem de 0,05 %.

Considera-se, ainda, o êrro estatístico no valor extrapolado, que é função do intervalo de extrapolação, do intervalo de variação de parâmetro de eficiência, do número de pontos nêste intervalo e, naturalmente,da variância dos resíduos.

CAPÍTULO II

Medida do coeficiente de conversão interna total da transição de 279 Kev do Tl^{203}

A medida do coeficiente de conversão interna total do Tl^{203} foi escolhida para o primeiro teste do método de coincidência generalizado, por permitir a verificação da técnica de variação do parâmetro de eficiência com um nuclídeo que se desintegra pela emissão de apenas um grupo beta, como pode ser considerado o Hg^{203}. Evitou-se, assim, a introdução das hipóteses mais críticas do método de coincidência generalizado, antes de se ter comprovado devidamente esta técnica.

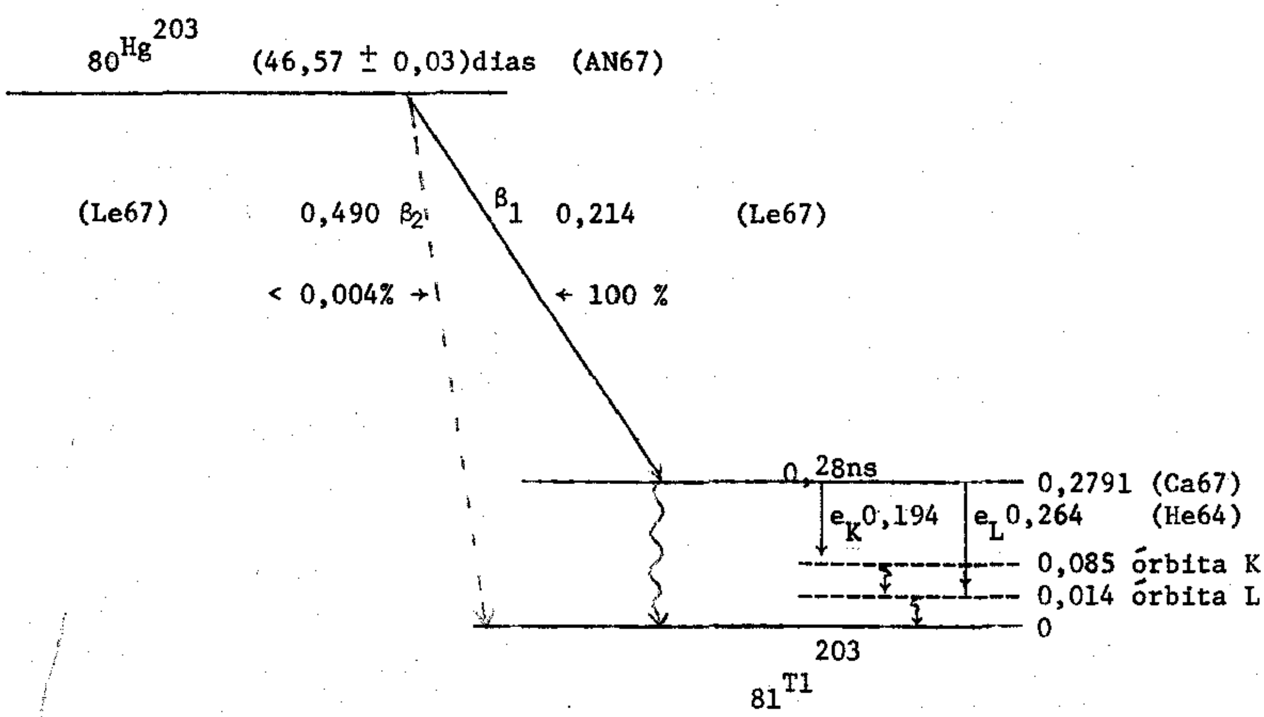
As características do esquema de desintegração do Hg^{203} são favoráveis ao tipo de medida propôsto. Desprezando-se o grupo beta que deixa o Tl^{203} no estado fundamental, de abundância relativa menor do que 0,004%, a desintegração do Hg^{203} reduz-se a um grupo beta seguido por uma transição que se dá, com porcentagem maior do que 20%, por conversão interna. O valor relativamente alto do coeficiente de conversão interna é vantajoso por dois motivos: primeiro porque a ordem de grandeza do êrro na medida torna-se menor do que o valor determinado; segundo, porque - a energia da transição decrescendo com o crescimento dêste coeficiente - a radiação gama competitiva com a conversão interna é de energia relativamente baixa, 279 Kev, tornando quase nula a probabilidade de ser detectada no contador $4\pi\beta(PC)$.

Quanto ao valor do coeficiente de conversão interna para esta transição, encontra-se na literatura cêrca de trinta resultados para o coeficiente de conversão interna parcial, α_k, obtidos por diferentes métodos de medida entre

1948 e 1967, sendo que os valores publicados nos últimos 10 anos apresentam um acôrdo satisfatório. Entre êstes inclue-se a determinação de J.G.V. Taylor (Ta62) realizada em Chalk River, utilizando a técnica de variação do parâmetro de eficiência em sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$ e o valor de $K/(L + M + N)$ determinado por Nijgh et al. (Ni59). Torna-se desta forma possível, comparar a referida técnica nos sistemas $4\pi\beta(PC)-\gamma$ de Chalk River e do IEA, assim como, verificar o êrro sistemático por ela introduzido ao comparar êstes resultados com os obtidos por outros métodos de medida.

II.1. Fórmula de coincidência generalizada para o Hg^{203}

Segundo as referências abaixo citadas, a desintegração do Hg^{203} dá-se de acôrdo com o seguinte esquema:



Obs.: as linhas horizontais pontilhadas representam os níveis atômicos excitados devido às lacunas nas órbitas K e L produzidas pela conversão interna da transição de 279 Kev. Tôdas as energias são dadas em Mev

Utilizando a fórmula da constante para a correção de esquema de desintegração para eficiências linearmente relacionadas (I 21) tem-se para o Hg^{203}:

$$K = \frac{a_1C_1 \left(1 - \frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}\right)_1 + a_2C_2 \left(1 - \frac{\alpha\varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}\right)_2}{\frac{a_1\varepsilon_{\gamma 1}\, C_1}{a_1\varepsilon_{\gamma 1} + a_2\varepsilon_{\gamma 2}} \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma}\right)_1 + \frac{a_2\varepsilon_{\gamma 2}\, C_2}{a_1\varepsilon_{\gamma 1} + a_2\varepsilon_{\gamma 2}} \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma}\right)_2} \qquad \text{(II 1)}$$

onde tomando β_1 como eficiência de referência, C_2 fica definido conforme a fórmula (I 16) por:

$$\varepsilon_{\beta_2} = 1 - C_2\,(1 - \varepsilon_{\beta_1})$$

e, nêste caso, $C_1 = 1$

Considerando que o grupo β_2 deixa o Tl^{203} no estado fundamental, tem- se que:

$$\varepsilon_{\gamma_2} = 0 \quad ; \quad \varepsilon_{\beta_{\gamma_2}} = 0 \quad ; \quad \varepsilon_{c_2} = 0 \quad ; \quad \varepsilon_{ce_2} = 0$$

No caso em que ε_{ce_1} pode ser menor do que 1 deve-se substituir $\alpha_1\varepsilon_{ce_1}$, segundo a fórmula (I 2), por

$$\sum_i \alpha_i \left[\varepsilon_{ce_i} + (1 - \varepsilon_{ce_i})\, \varepsilon_{(XA)_i}\right]$$

Desde que seja válida a hipótese de linearidade entre ε_{β_1} e ε_{β_2}, a fórmula (II 1) fica, então:

$$K = \frac{a_1C_1 \left(1 - \frac{\Sigma\alpha_i \left[\varepsilon_{ce_i} + (1 - \varepsilon_{ce_i})\, \varepsilon_{(XA)_i}\right] + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}\right)_1 + a_2C_2}{C_1 \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\gamma}\right)_1} \qquad \text{(II 2)}$$

Entretanto, a expressão (II 2) pode ser simplificada com as seguintes considerações:

1) sendo $a_2 < 4 \times 10^{-5}$ e $C_2 \cong \overline{E}_1/\overline{E}_2 = 0{,}4$, então $a_2C_2 < 2 \times 10^{-5}$. Uma estimativa de K fornece para esta constante o valor aproximado de 0,8,

portanto, se o êrro experimental em sua determinação fôr, na melhor das hipóteses, de 0,1 %, o êrro em K será da ordem de 8×10^{-4}. Logo tomando-se $a_2=0$, comete-se um êrro desprezível em face aos demais.

2) Impondo-se ao canal gama condições de discriminação de maneira a selecionar para a medida apenas o fotopico da radiação de 279 Kev, elimina-se a contribuição dos raios X consequentes da conversão interna (o que está implìcitamente supôsto na fórmula), das radiações de bremsstrahlung e das coincidências gama-gama, tornando $\varepsilon_{c1} = 0$.

3) Em consequência do que foi dito em I.1, a probabilidade de detecção dos eletrons de conversão associados à transição de 279 Kev do Tl^{203} ($E_{(e_K)}$ = 194 Kev e $E_{(e_L)}$ = 264 Kev) é maior do que 99,9 %, devido à alta eficiência intrínseca do detector e ao fato de serem desprezíveis as absorções na fonte e no suporte para essas energias. Na técnica de variação do parâmetro de eficiência por absorção beta, o que ocorre a princípio, quando a espessura dos absorvedores é muito menor do que o alcance dêstes eletrons , são espalhamentos que não afetam a detecção dos mesmos, pois sendo 4π a geometria do contador, qualquer que seja o ângulo de espalhamento, os eletrons de conversão estarão sempre contidos no volume sensível do detector. Entretanto, aumentando-se a espessura dos absorvedores êstes eletrons podem começar a ser absorvidos, conforme mostram as curvas de absorção de eletrons monoenergéticos (Si55). Desta forma torna-se lícito que se atribua a ε_{ce} o valor 1, desde que se assegure que no intervalo útil de variação do parâmetro de eficiência, ε_{ce_1} mantenha-se constante.

Em vista das considerações acima e abandonando o índice 1 , K reduz-se a:

$$K = 1 - \frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha} \qquad \text{(II 3)}$$

Substituindo-se a expressão (II 3) em (I 20) tem-se a fórmula de coincidência generalizada para o Hg^{203}, simplificada pelas condições experimentais:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \left[1 + \frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha} \, \frac{1 - N_c/N_\gamma}{N_c/N_\gamma} \right] \qquad \text{(II 4)}$$

Trata-se portanto da equação de uma reta em $N_\beta N_\gamma / N_c$ e $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$

de coeficiente angular igual a $N_o(\frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha})$ e de ordenada inicial igual a N_o. Assim sendo, torna-se possível determinar o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ através da variação de N_c/N_γ.

Quanto à expressão para o parâmetro de eficiência, tem-se pela fórmula (I 9), considerando-se que nêste caso k = 1, $f(\varepsilon_\beta) = \varepsilon_\beta$ e $\varepsilon_c = \varepsilon_{\beta_\gamma}\varepsilon_\gamma/(1+\alpha)^2$:

$$\frac{N_c}{N_\gamma} = \varepsilon_\beta + \frac{\varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}(1 - \varepsilon_\beta)$$

Podemos adiantar, entretanto que para a energia de 279 Kev o valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ é menor do que 10^{-3}. Desta forma, N_c/N_γ pode ser considerado como uma medida da eficiência beta, uma vez que o segundo têrmo é desprezível em face a ε_β em seu intervalo útil de variação que, como veremos, não incluirá valores de ε_β menores do que 0,70. Pelo mesmo motivo $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ poderá ser desprezado na fórmula (II 4) para algumas análises, em primeira aproximação, dos resultados.

II.2. Descrição do sistema 4πβ(PC)-γ do IEA

O sistema de coincidência 4πβ(PC)-γ do IEA, utilizado para a medida do Hg^{203}, compõe-se, essencialmente, de um detector de geometria 4π, tipo "pill--box", de gás em circulação, operando em regime proporcional, acoplado a um cristal de NaI(Tl), e das unidades eletrônicas que completam o canal beta e o canal gama e formam o canal de coincidência.

O detector 4πβ(PC) (figuras 1 e 2) é formado por duas partes simétricas, de latão, entre as quais pode correr uma placa com dois orifícios para a colocação das fontes, permitindo a troca das mesmas sem abertura do detector. A vedação é garantida por um sistema de aneis de borracha. Seu volume interno, obedecendo a um projeto aperfeiçoado para êste tipo de contador, é delimitado por definidores de latão, que o tornam aproximadamente cilíndrico, tendo 3,0 cm de diâmetro e 7,5 cm de comprimento. Em cada metade do detector estende-se, paralelamente ao eixo do cilindro, o anodo, constituído por um fio de aço inoxidável, de 25μ de diâmetro, preso pelas extremidades a isoladores de teflon.

O gás de contagem utilizado para a medida em questão foi o propano de 99,9% de pureza. O fator de amplificação gasosa dêste gás no referido conta-

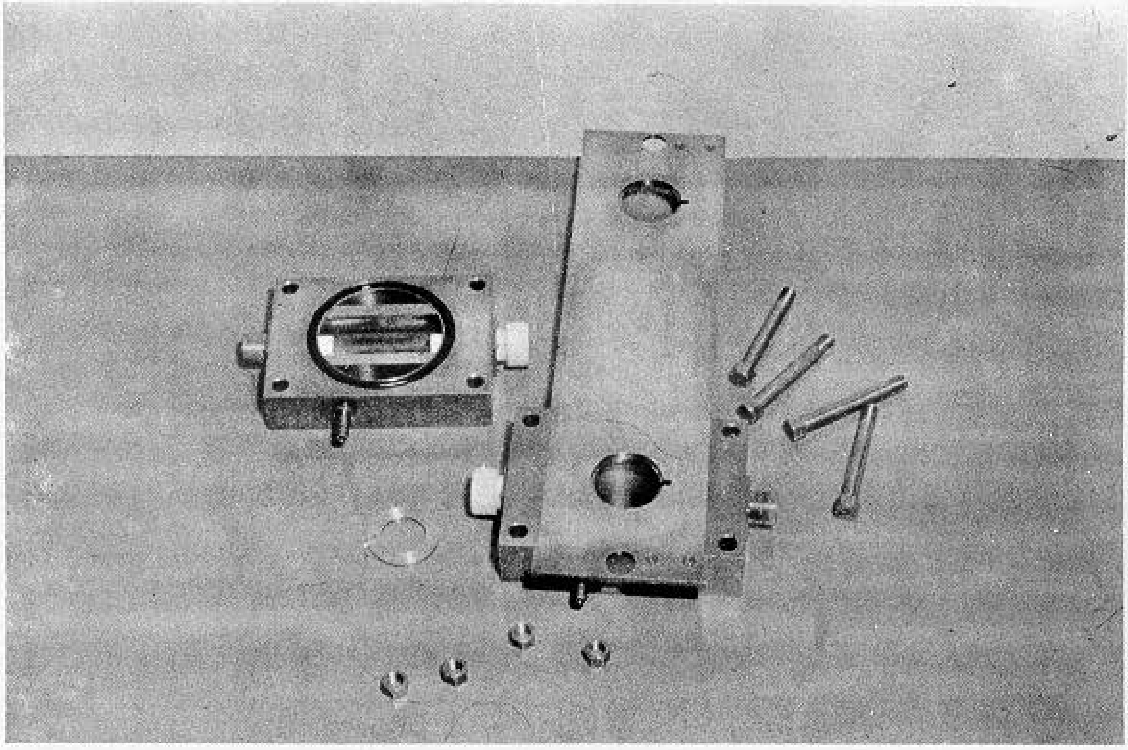


Figura 1

Detector $4\pi\beta$(PC) tipo "pill-box".

Na foto acima vê-se as duas partes simétricas do detector, encontrando-se sôbre a metade inferior, a placa com dois orifícios, para a colocação das fontes. Na metade superior, pode-se ver os definidores do cilindro que constitue o volume interno do detector.

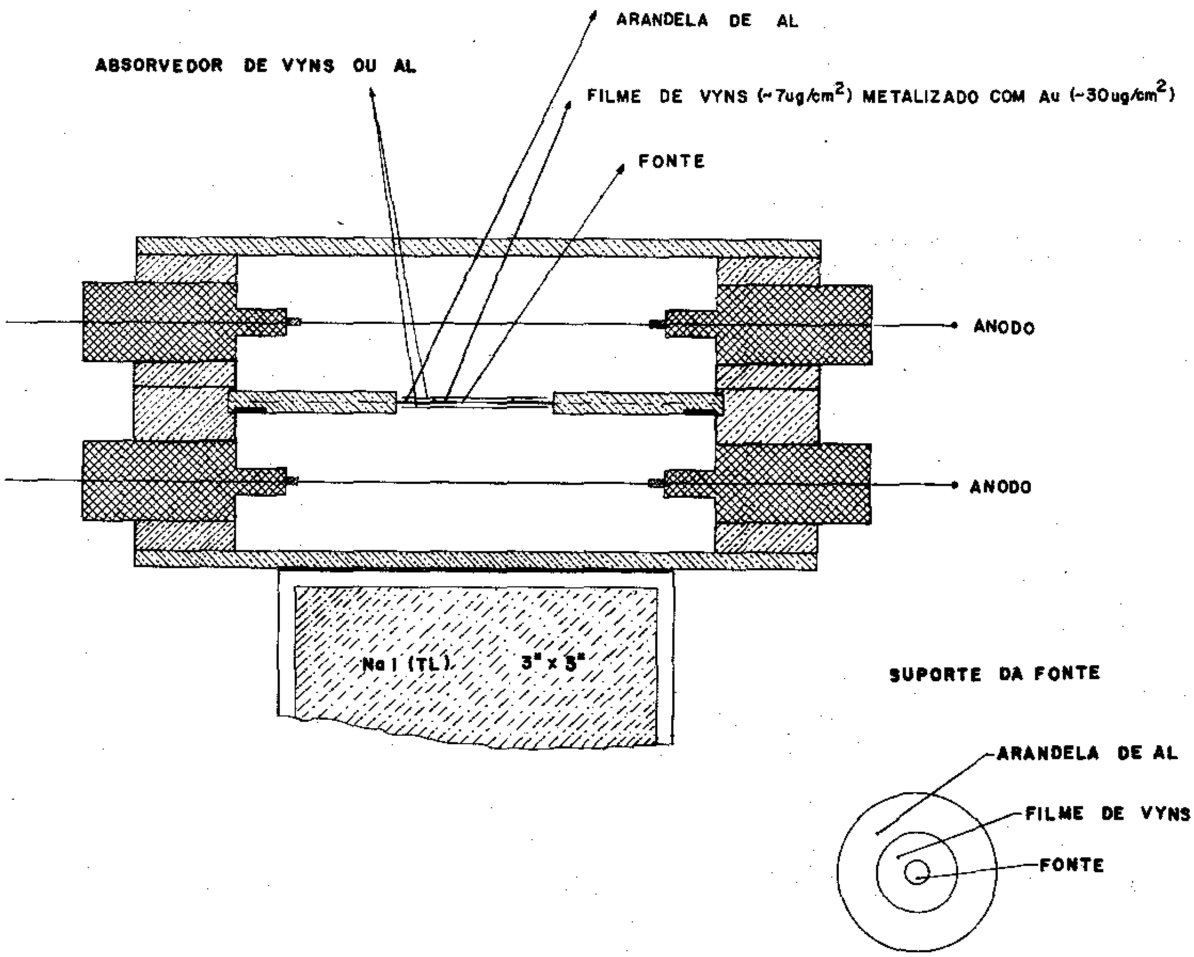


Figura 2

Corte transversal esquemático do detector $4\pi\beta$(PC), mostrando a posição dos absorvedores de VYNS ou de alumínio utilizados para a variação do parâmetro de eficiência.

Em baixo, à direita, está representado o suporte da fonte, constituído por uma arandela de alumínio de 3 cm e 1,5 cm de diâmetro externo e interno, respectivamente. Sôbre ela adere-se um filme VYNS metalizado.

dor, operando na tensão característica para a detecção da radiação beta do Hg^{203} (3600 volts), é da ordem de 4×10^{6} (Re67b).

Em contacto direto com a parede inferior, de 0,3 cm de espessura, do "pill-box", encontra-se o cristal de NaI(Tl) de 3" x 3", acoplado à uma fotomultiplicadora RCA modêlo 8054.

Os dois detectores são blindados com paredes de chumbo de 8 cm de espessura.

O sistema eletrônico associado a ambos os detectores está representado no diagrama de bloco da figura 3. Merecem referência especial nêste sistema:

1) fontes de alta tensão de grande estabilidade: 0,005 % por hora.
2) amplificador do canal beta, linear, de alto ganho, baixo ruído e com formação de pulso por dupla diferenciação com linha de atrazo. Estas características são necessárias para a amplificação dos pulsos provenientes do detector $4\pi\beta$(PC) cujas amplitudes variam por fatôres que podem ser maiores do que 1000. Para tais sobrecargas seu tempo de recuperação é da ordem de 8 μs, não comprometendo gravemente o pequeno tempo morto do detector proporcional. Além do mais sendo o tempo de subida de seus pulsos de saída menor do que 0,5 μs, permite que se utilize no circuito de coincidência tempos de resolução relativamente pequenos.
3) fotomultiplicadora, pré-amplificador e amplificador do canal gama de boa estabilidade (< 1% por dia), o que é favorecido pela manutenção do ambiente em temperatura constante.
4) circuitos para a fixação do tempo morto nos canais beta e gama, garantindo o valor fixado dentro de 20%.
5) circuito de atraso variável, entre 0,5 e 1,5 μs, projetado no IEA, para a colocação dos pulsos do canal gama em fase com os do canal beta, quando necessário.
6) circuito de coincidência a diodo, com os seguintes tempos de resolução nominais: 0,25, 0,5, 0,75 e 1 μs. A variação do tempo de resolução fixado não supera 10%.
7) utilização, como referência de tempo para os três canais, da frequência de um oscilador de cristal, garantindo uma precisão no tempo de 0,01%.

Várias séries de medidas foram realizadas nêste sistema para verificar a perda dos componentes do comêço do espectro de energia da radiação beta de vá

SISTEMA DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta-\gamma$

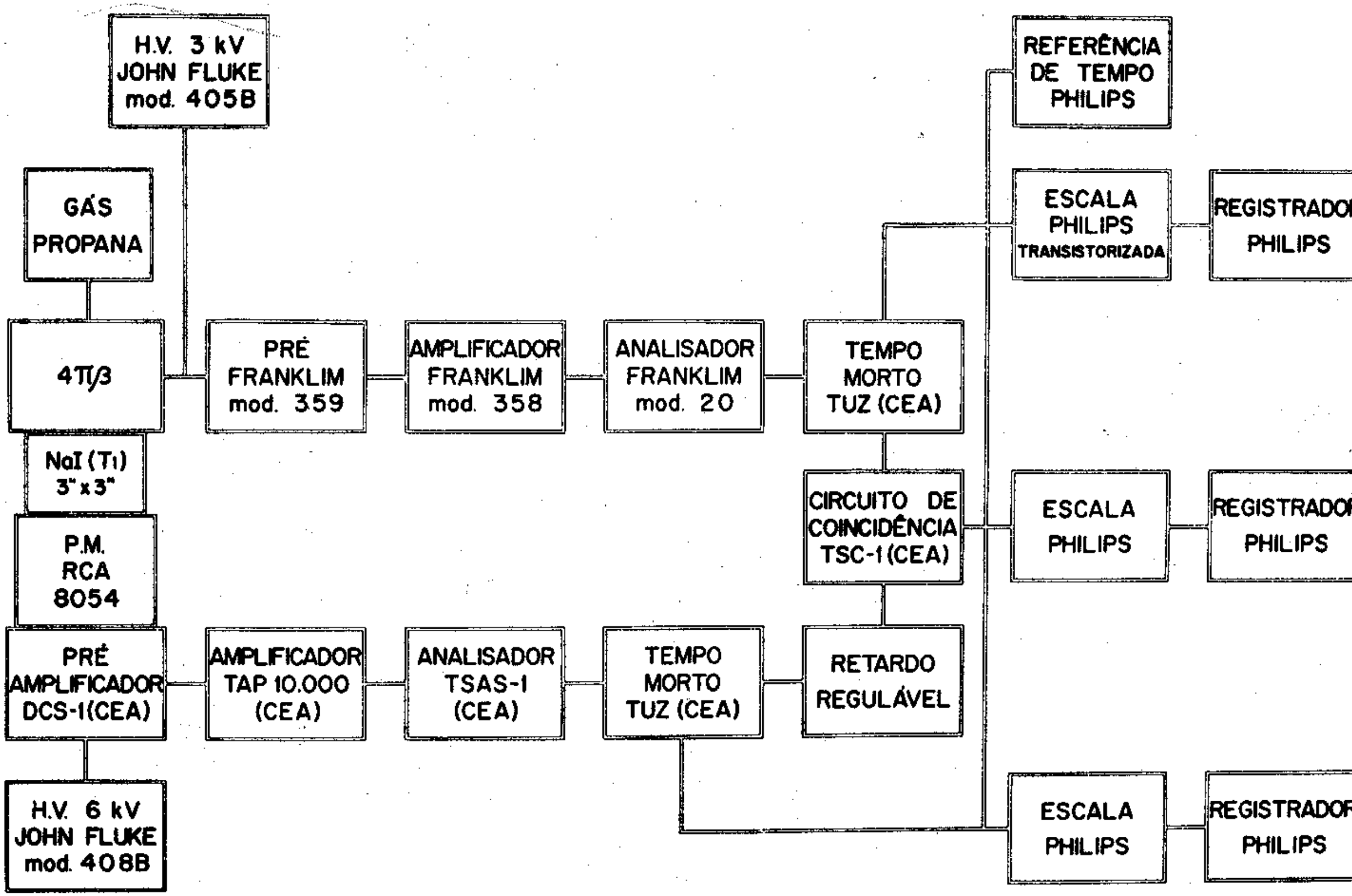


Figura 3

Diagrama de bloco do sistema $4\pi\beta$(PC)-γ do IEA

rios radionuclídeos; a probabilidade de resposta do detector beta; o eventual desvio da geometria 4π; as perdas de contagem devidas a tempo morto; a amplificação gasosa para vários gases e tensões de operação; as perdas de coincidências reais; a estabilidade eletrônica a longo e curto prazo; a distribuição estatística das contagens registradas nos três canais, as eficiências de detecção em função do nível de discriminação, e várias outras (Re67a)(Re67b).

O bom funcionamento dêste sistema $4\pi\beta$(PC)-γ do IEA foi comprovado pelos resultados obtidos na "International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by means of Co^{60}", pelos quais se deduz que com a sua utilização o êrro sistemático na medida absoluta da atividade de nuclídeos de esquema de desintegração simples é menor do que 0,1 % (Mü67)(Mo67b).

II.3. Descrição das fontes de Hg^{203}

a) Solução de Hg^{203}

O Hg^{203} é obtido por reação (n,γ), irradiando-se $(NO_3)_2$ Hg, enriquecido a mais de 90% em Hg^{202}. A solução utilizada foi importada da Agência Internacional de Energia Atômica com as seguintes especificações:

Atividade específica : 25,33 Ci/g de solução
Densidade: (1,01598 ± 0,00006) g/cm^3
Composição química: 52 µg Hg por g de solução em HCl 0,1 N

Impureza radioativa devido a emissores gama: { com energia de 120 a 260 Kev :< 1,6 % ; com energia de 296 a 2000 Kev :< 0,03 % }

Impureza radiativa devido a emissores beta: não detectáveis

b) Suporte das fontes

O suporte de fontes convencional para medidas de alta precisão em detector 4π está representado na figura 2. Consiste de uma arandela de alumínio de 1,5 cm de diâmetro interno, 3 cm de diâmetro externo e 0,1 mm de espessura, sôbre a qual se estende um filme plástico de VYNS (acetato de cloreto de polivinila) de cêrca de 7 µg/cm^2 de espessura (Pa55). Afim de evitar efeitos de distorção no campo elétrico do detector pela introdução de uma área não condutora, os filmes são metalizados por vaporização de ouro em alto vácuo, revestindo-se, de cada lado, de uma camada de cêrca de 15 $\mu g/cm^2$ dêste metal (Mo65).

c) Preparação das fontes

Sôbre os filmes metalizados foram depositadas alíquotas da solução acima descrita cujas massas de cêrca de 30 mg foram determinadas pelo método do picnômetro (Mo67b).

A secagem das fontes foi feita por evaporação em atmosfera de gás sulfídrico, precipitando-se o Hg em forma de HgS, afim de que não houvesse perda devida à volatilização do mercúrio.

II.4. Determinação experimental da reta de eficiência para o Hg^{203}

a) Condições de operação

Para se estabelecer as condições de operação foram levantadas curvas características e espectros de pulsos nos canais beta, gama e de coincidência, como especificado nas figuras 4, 5, 6 e 7.

Os tempos mortos nos canais beta e gama foram fixados em 5, 6 μs, valor efetivo êste, que é maior do que a soma do tempo morto do detector e do circuito eletrônico, em ambos os canais.

Nas condições experimentais da medida do Hg^{203}, as contagens de fundo nos canais beta, gama e de coincidência são da ordem de 0,7, 7,0 e 0,025 contagens por segundo, respectivamente.

b) Técnica de medida pela variação do parâmetro de eficiência.

Esta técnica consiste, essencialmente, na determinação experimental de $N_\beta N_\gamma/N_c$ para valores diferentes de N_c/N_γ, visando a obtenção de uma reta segundo a equação (II 4).

Procedeu-se à variação de N_c/N_γ (para o Hg^{203}, $N_c/N_\gamma \approx \varepsilon_\beta$) por absorção beta externa pelos motivos mencionados em I.3.

Para a absorção do início do espectro, particularmente por se tratar de

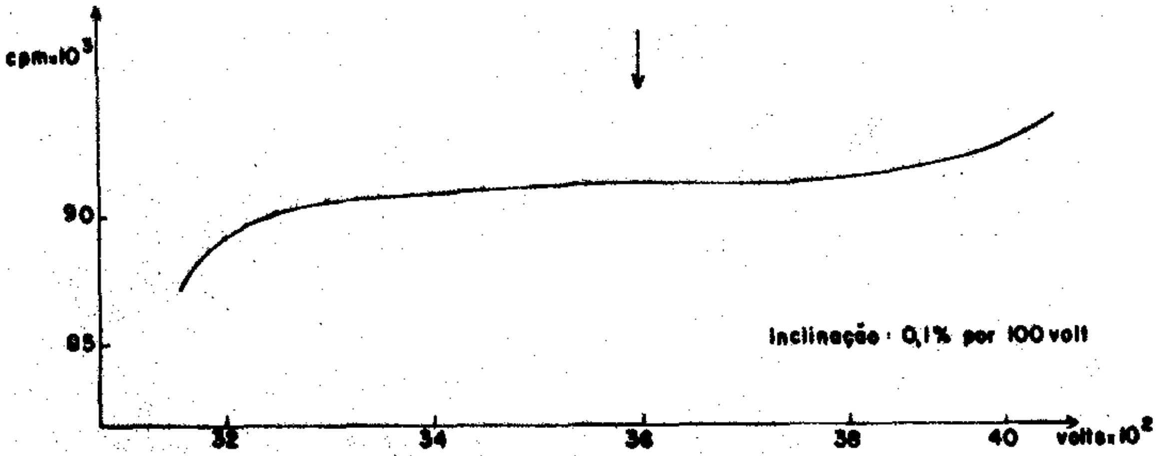


Figura 4

Curva característica para o Hg^{203} no detector $4\pi\beta$(PC).

Por esta curva fixou-se a voltagem de operação no valor indicado pela flecha, 3600 volts, para o ganho 16 do amplificador, equivalente a um fator de amplificação eletrônica de 1750, e, para o nível de discriminação de 5 volts, que corresponde aproximadamente a 0,1 Kev.

A inclinação do patamar, 0,1 % por 100 volts, mostra que é pequena a perda do começo do espectro de pulsos, devido à discriminação eletrônica ou à insuficiente amplificação.

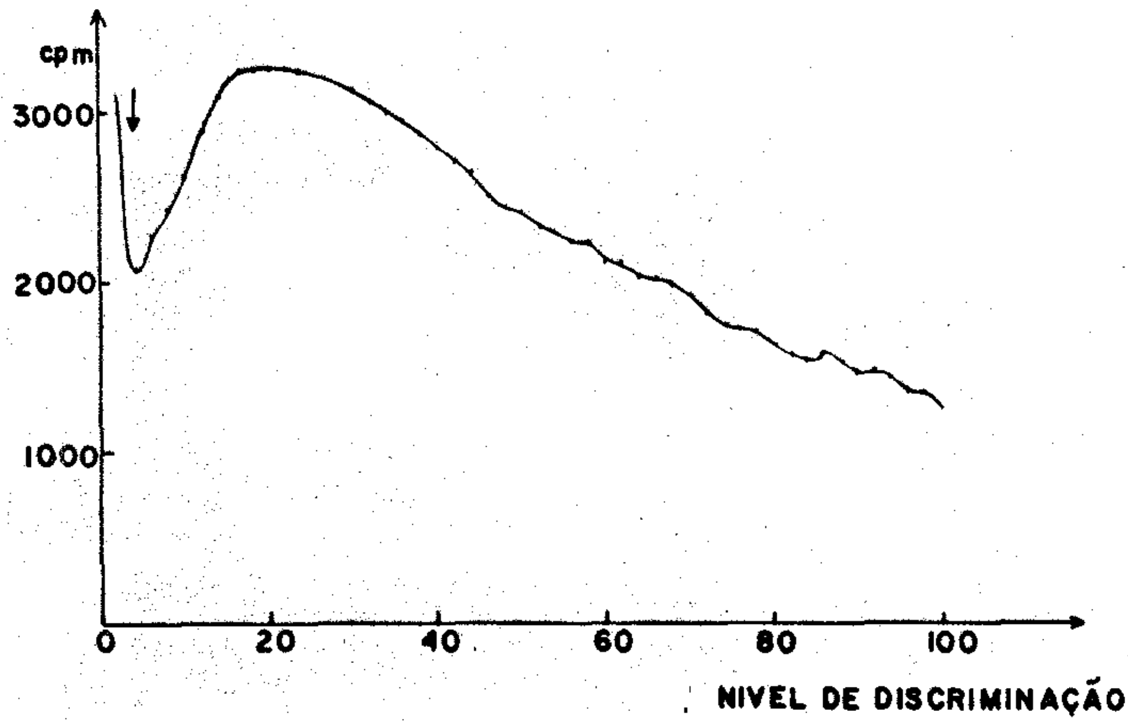


Figura 5

Espectro de pulsos do Hg^{203} no canal beta.

O espectro de pulsos acima foi levantado para o ganho 16 do amplificador e para a voltagem de 3600 volts. Indica-se o nível de discriminação fixado, 5 volts, afim de eliminar o ruído.

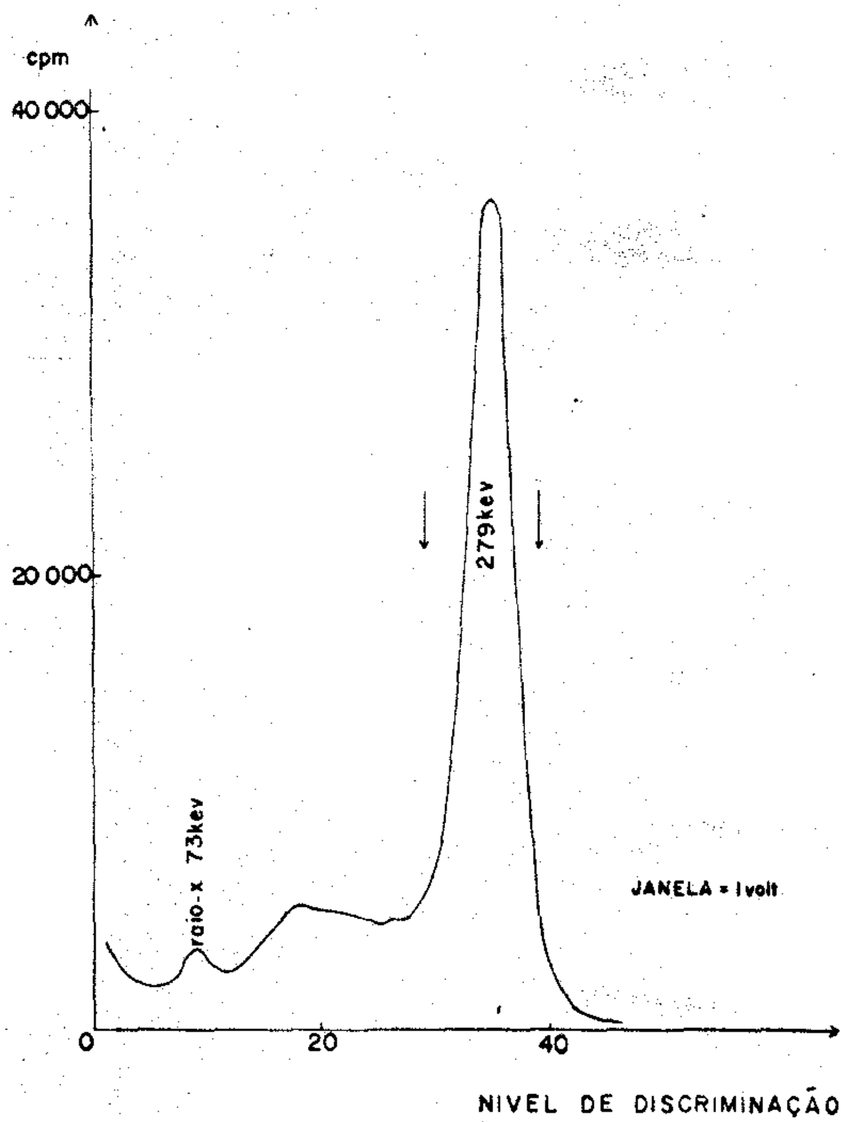


Figura 6

Espectro de energia dos fótons do Hg^{203}.
No espectro acima indica-se os níveis de discriminação inferior e superior fixados no canal gama com o objetivo de permitir que apenas o pico fotoelétrico da radiação gama de 279 Kev contribua para a medida.

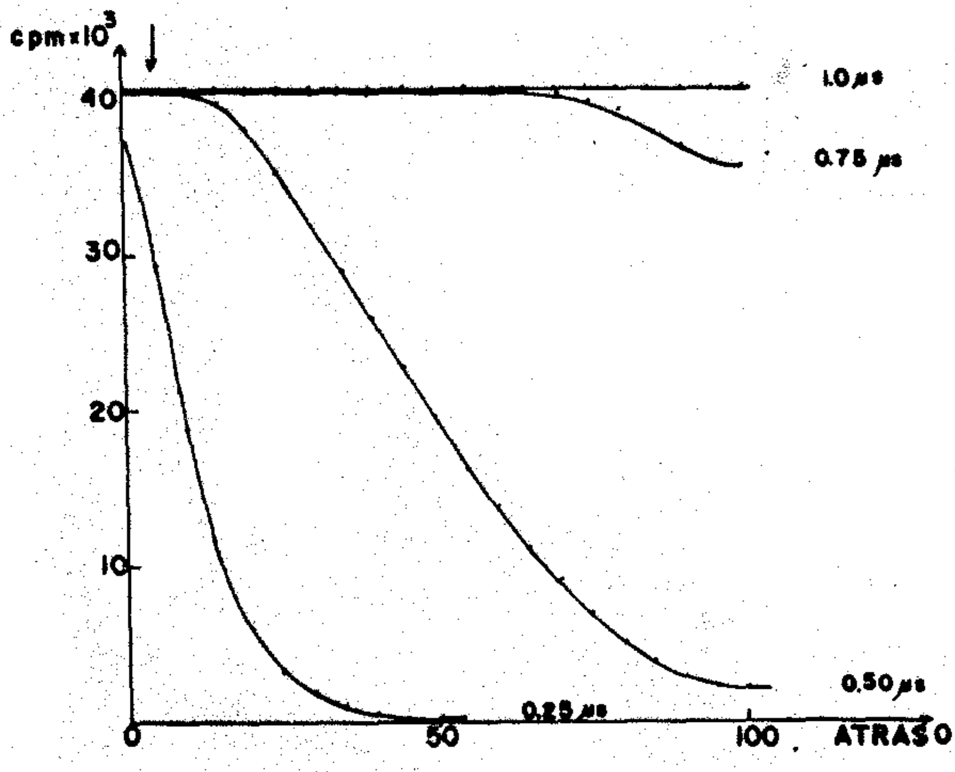


Figura 7

Curva de equilibração para o Hg^{203}.
As curvas da contagem no canal de coincidência versus a defazagem dos pulsos dos canais beta e gama mostram que para os tempos de resolução nominais de 0,5, 0,75 e 1 μs e para o intervalo de 0 a 10 da escala do circuito de atraso, não há perda de coincidências reais. O tempo de resolução foi fixado em 0,75 μs cujo valor efetivo é de 0,88 μs e o atraso, no ponto 5,0 da referida escala, ou seja, atrasando o pulso gama de 0,6 μs.

grupo beta de baixa energia, utilizou-se como absorvedores filmes metalizados iguais aos que servem de suporte às fontes, de espessuras variáveis entre 15 $\mu g/cm^2$ e 200 $\mu g/cm^2$.

Sobrepondo-se o filme ao suporte da fonte, em atmosfera saturada de vapor de acetona, consegue-se que os filmes fiquem aderidos um ao outro e evita- se a formação de bolhas de ar entre êles, o que provoca instabilidade de contagem quando estas se formam sôbre a fonte.

Para variar significativamente a eficiência para valores inferiores a 0,75 %, usou-se como absorvedores, fôlhas de alumínio, de aproximadamente 4 mg/cm^2 de espessura, colocadas de ambos os lados da fonte, em quantidade crescentes.

Na determinação experimental de $N_\beta N_\gamma/N_c$ para cada absorvedor utilizou -se dos mesmos procedimentos do método de coincidência convencional para esquemas de desintegração simples. As correções para as radiações de fundo, tempo morto e tempo de resolução são totalmente análogas, apenas não se aplicando a correção para $\varepsilon_{\beta\gamma}$.

Para cada ponto da reta foram realizadas 6 medidas, fixando-se o tempo de modo a acumular cêrca de 4×10^6 contagens no canal beta. Manteve-se, desta forma, o êrro estatístico de contagem em cada ponto menor do que 0,1 %.

Como o tempo de duração de uma série de medidas para um mesmo absorvedor não é desprezível em face à meia vida do Hg^{203}, estas foram corrigidas para o tempo inicial da primeira delas. Os valores de $N_\beta N_\gamma/N_c$ para cada ponto da reta foram, por sua vez, corrigidos para uma data de referência.

A figura 8 mostra a reta obtida para uma das fontes medidas, variando-se N_c/N_γ até 75 %. Os pontos da reta foram ajustados pelo método dos mínimos quadrados ponderado, utilizando-se um programa para computador que fornece os valores da ordenada inicial, do coeficiente angular, o êrro estatístico em ambos e os desvios dos valores experimentais em relação aos valores ajustados . Os pêsos foram tomados como o inverso do quadrado dos êrros estatísticos de contagem, uma vez que os demais êrros estatísticos em cada ponto da reta são desprezíveis em relação a êste.

No eixo das ordenadas tem-se a atividade específica em unidades de d.p.s./ mg. Desta forma torna-se possível comparar os valores extrapolados, ou seja,

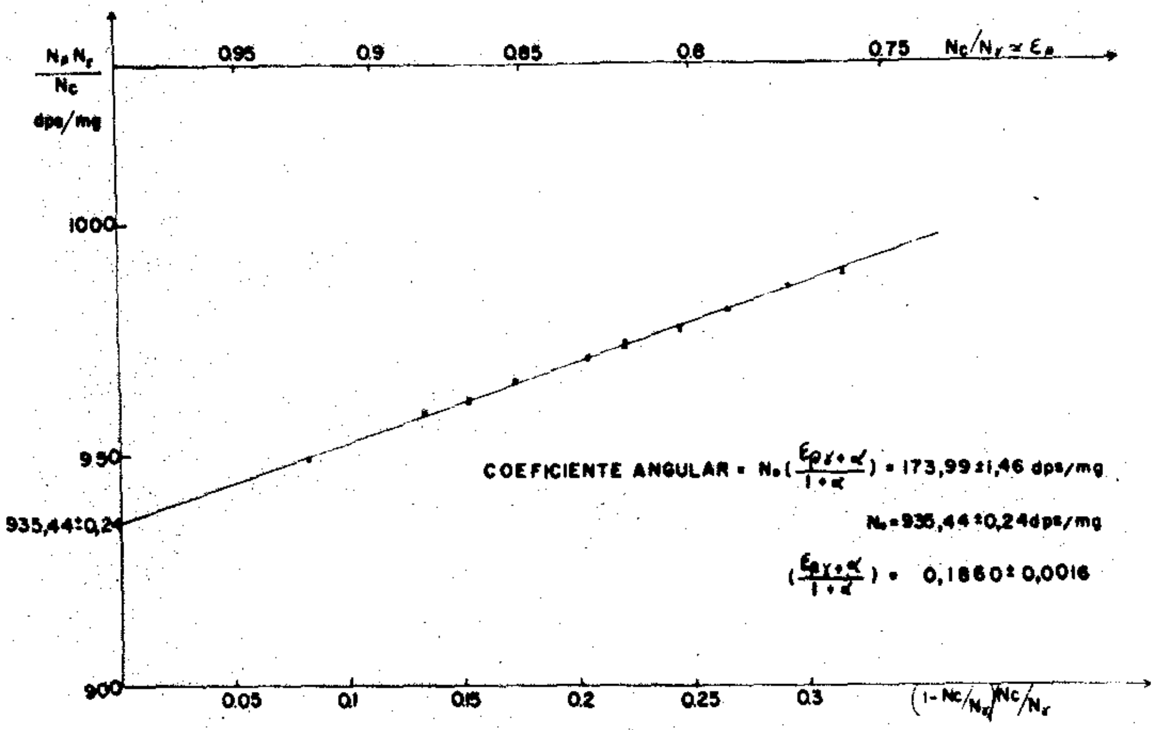


Figura 8

Reta típica para o Hg^{203} obtida pela técnica de variação do parâmetro de eficiência.

Para a obtenção desta reta utilizou-se como absorvedores apenas filmes de VYNS. O primeiro ponto da reta foi obtido sem a utilização de absorvedores, sendo sua ineficiência devida à absorção no filme suporte e, principalmente, à auto-absorção.

Para o último ponto da reta foi usado absorvedor de espessura inferior a 1,5 mg/cm. O ajuste ponderado dos pontos pelo método dos mínimos quadrados fornece os valores especificados na figura. Os êrros indicados em cada ponto são êrros estatísticos de contagem.

os valores da atividade específica da solução utilizada fornecidos pela extrapolação das retas obtidas para cada uma das fontes medidas.

Dividindo-se o coeficiente angular da reta pelo seu valor extrapolado N_o, obtém-se o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$, de onde pode-se tirar o valor de α, uma vez conhecido o valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$.

II.5. Limite superior do intervalo de variação de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ - Significado da curva de eficiência

Como foi dito em II.1. é necessário assegurar que no intervalo útil de variação do parâmetro de eficiência, ε_{ce} se mantenha constante, ou seja, que os eletrons de conversão não sejam absorvidos quando se aumenta a espessura dos absorvedores para a radiação beta de 214 Kev.

Pelo comportamento da curva de absorção de eletrons monoenergéticos (Si55) sabe-se que esta no início decresce lentamente com a espessura do absorvedor. Desta forma, torna-se necessário estimar um limite superior para a espessura dos absorvedores ou para o valor de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$, tal que abaixo dêste limite se possa garantir que os eletrons em questão não sofrem discriminação.

Considerando-se as energias em jôgo, pode-se deduzir que a partir de um certo ponto a reta de eficiência deve tender para a horizontal, uma vez que a eficiência beta não se altera com a absorção dos eletrons de conversão, havendo, porém, um decréscimo de N_β e, portanto, de $N_\beta N_\gamma/N_c$. Sendo pequeno êste efeito na região considerada poderia ser encoberto pelo êrro estatístico dos pontos da reta, mas daria origem à um pequeno êrro sistemático no coeficiente angular da mesma.

Para a verificação do efeito de absorção dos eletrons de conversão, como também para o estudo de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, o que veremos mais adiante, mediu-se uma das fontes de Hg^{203}, utilizando-se de início absorvedores de VYNS e depois de alumínio, chegando-se a colocar espessuras de 90 mg/cm^2, predominantemente de alumínio, de cada lado da fonte. Atingiu-se, assim, a eficiências beta pràticamente nulas, isto é, da ordem de 10^{-4}.

Antes de tratarmos do intervalo útil de variação do parâmetro de eficiência, é interessante analisar a curva obtida (fig. 9) para a compreensão do sentido da correção para esquema de desintegração nêste caso particular.

Considerando que para o Hg^{203} $N_c/N_\gamma \approx \varepsilon_\beta$, a fórmula (II 4) pode ser escrita como:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o + N_e \frac{(1-\varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} + N_o \frac{\varepsilon_{\beta_\gamma}}{1+\alpha} \quad \frac{(1-\varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \qquad \text{(II 5)}$$

uma vez que α pode ser pôsto como:

$$\alpha = \frac{N_e}{N'_\gamma}$$

onde N_e é o número de eletrons de conversão emitidos por segundo e por miligrama e N'_γ é o número de gamas emitidos por segundo e por miligrama e, portanto, $N_e + N'_\gamma = N_o$, pois tôda a desintegração do Hg^{203} é seguida pela emissão de um eletron de conversão ou de um raio gama, e então

$$\frac{\alpha}{1+\alpha} = \frac{N_e}{N_o}$$

Para simplificar esta análise, podemos considerar $\varepsilon_{\beta_\gamma} \approx 0$ e a expressão (II 5) fica:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o + N_e \frac{(1-\varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \qquad \text{(II 6)}$$

Observa-se então que para $\varepsilon_\beta \longrightarrow 1$ ou $N_e \longrightarrow 0$ segue-se que $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \longrightarrow$ $\longrightarrow N_o$

Na curva da figura 9, onde estão indicados os pontos correspondentes às espessuras dos absorvedores aproximadamente iguais ao alcance calculado dos eletrons de conversão de 194 Kev(~16,3 %) e de 264 Kev(~4,8 %), observa- se a tendência expressa pela fórmula (II 6), ou seja, a correção para esquema de desintegração tende a anular-se quando a eficiência beta tende para 100% ou quando todos os eletrons de conversão são discriminados.

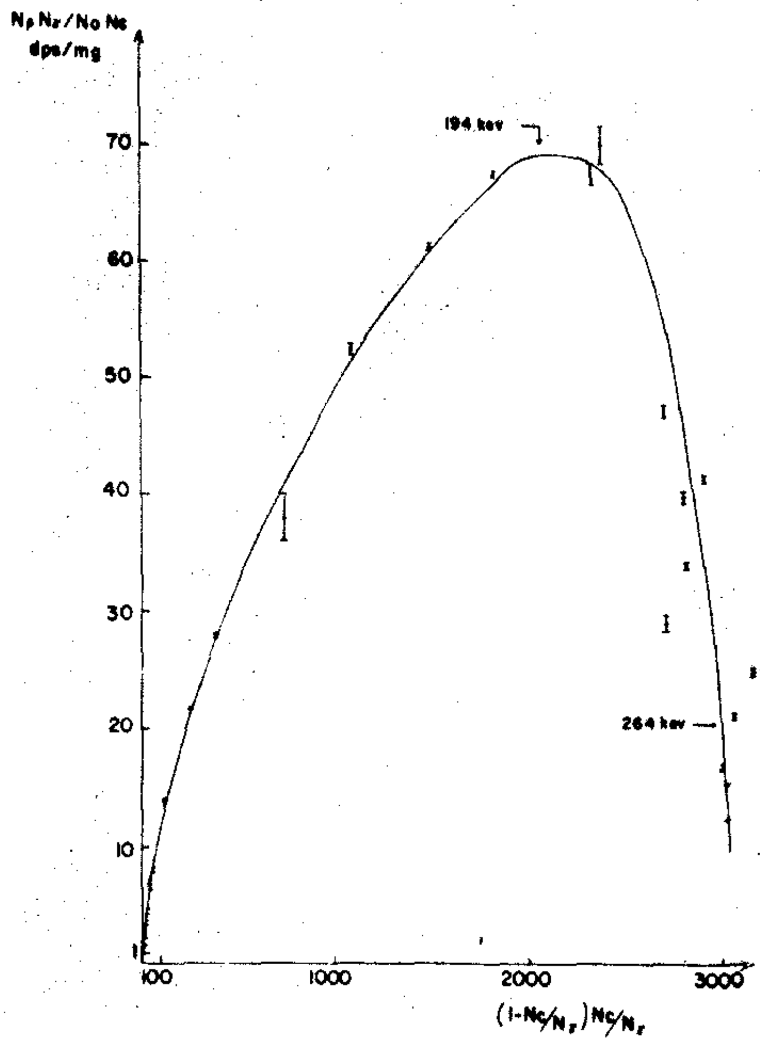


Figura 9

Curva obtida para o Hg^{203} pela técnica da variação do parâmetro de eficiência, diminuindo-se a eficiência beta até torná-la da ordem de 10^{-4}. A reta equivalente a da figura 8 obtida nesta medida não é visível devido à escala reduzida, uma vez que o maior valor de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ incluído na referida reta é menor do que 0,5 (vide fig. 10)

Na parte inicial desta curva, para valores de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ menores do que 4,0 (fig. 10), seu comportamento, como veremos, é linear conforme predito pela equação (II 4) para N_e = cte, em seguida tende, a princípio, lentamente e depois ràpidamente, para a horizontal, devido à absorção dos eletrons de conversão, diminuindo sua inclinação e, portanto, a correção para esquema de desintegração. Para espessuras dos absorvedores da ordem do alcance calculado dos eletrons de 194 Kev (~ 43 mg/cm^2) cai ràpidamente. Ultrapassada a espessura equivalente ao alcance dos eletrons de 264 Kev (~ 70 mg/cm^2), tende a voltar a 1, onde $N_\beta N_\gamma/N_c = N_o$, e portanto, onde a correção para esquema de desintegração anula-se. Como o alcance do grupo beta de 214 Kev é menor do que a dos eletrons de 264 Kev, a eficiência beta para os últimos pontos, oscila entre valores próximos de zero, ou seja, entre valores relativamente grandes de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$, e o valor de $N_\beta N_\gamma/N_o N_e$ ainda cai, uma vez que N_β diminui.

Esta curva mostra que a correção para esquema de desintegração para o Hg^{203}, sem considerar $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ e o pequeno efeito da interação gama com os absorvedores , é devida apenas aos eletrons de conversão detectados no contador beta. Era de se esperar êste resultado pelas fórmulas básicas de coincidência, lembrando que as modificações nelas introduzidas pelo processo de conversão interna influem em $N_\beta N_\gamma/N_c$, apenas na medida em que influem em N_β , pois a relação entre as contagens gama e de coincidência, não se altera.

Para determinar o intervalo máximo de variação de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ para o qual não ocorre o efeito de absorção dos eletrons de conversão, testou-se estatìsticamente (Apêndice) pela análise da variância, a igualdade dos coeficientes angulares das retas obtidas acrescentando-se sucessivamente pontos a uma reta de referência, como indicado na figura 10. (A reta de referência foi escolhida por se ter verificado que os coeficientes angulares das retas obtidas com um número crescente de seus pontos não apresentavam uma tendência sistemática de decréscimo).

Como êste teste só é válido para o caso linear, verificou-se por outro teste estatístico, o da melhor ordem polinomial de ajuste, que até a 8a. reta a inclusão de têrmos de ordem superior não é significativa, mas que na oitava e nona retas a inclusão de têrmos de 3a. ordem resulta em uma melhoria significativa do ajuste.

Pelo teste para a verificação da igualdade dos coeficientes angulares das

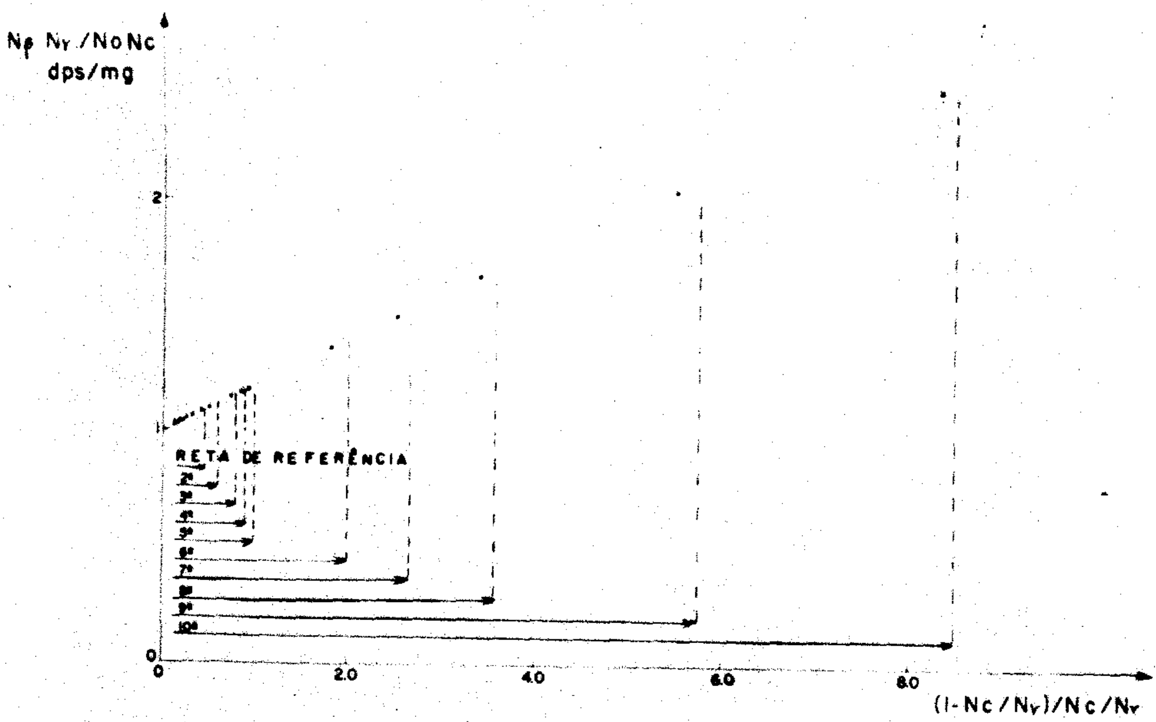


Figura 10

Êstes pontos pertencem à parte inicial da curva da figura 9.
Foram utilizados para estimar o intervalo de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ no qual não se verifica a absorção dos eletrons de conversão. Os 8 primeiros pontos determinam a reta de referência . Comparou-se cada uma das outras retas indicadas com esta, através de um teste estatístico para a verificação da igualdade de coeficientes angulares (Apêndice). Pelo resultado dêste e pelas considerações do texto conclui-se que apenas na reta de referência não se verifica absorção dos eletrons de conversão. Em consequência, os dados finais foram tomados para valores de $(1-N_c/N_\gamma)$ $/N_cN_\gamma$ não maiores do que os da reta de referência, ou seja, do que 0,5.

Tabela I

	Nº de Pontos	$(b_{ref} - b_i)$ %	Desvio Padrão em b_i %	Razão F	$F_{(1,\nu_2,0,95)}$ *
Reta de Referência	8	0	3,32	-	
2a. reta	9	1,62	3,01	0,11	4,67
3a. reta	10	3,04	1,59	0,62	4,60
4a. reta	11	4,04	1,52	1,06	4,54
5a. reta	12	5,94	1,48	1,89	4,49
6a. reta	13	5,66	1,95	1,85	4,45
7a. reta	14	5,89	0,94	2,15	4,41
8a. reta	15	6,34	0,63	2,72	4,38
9a. reta	16	8,55	0,70	2,40	4,35
10a. reta	17	10,11	1,06	1,35	4,32

* Para os graus de liberdade de F ver Apêndice

retas indicadas na figura 10, conclui-se que não há evidências de que êstes coeficientes angulares sejam diferentes.

Entretanto, antes de aceitar a conclusão do teste, convém analisar seus resultados parciais, ou seja, os valores da razão F, dos coeficientes angulares e do desvio padrão nêstes. Verifica-se pela Tabela I que a diferença porcentual, entre o coeficiente angular da reta de referência e de cada uma das retas, aumenta sempre, assim como aumenta, o valor de F até a 8a. reta. O desvio padrão nos coeficientes decresce devido ao aumento do número de pontos de reta para reta. Porém, para a 9a. e 10a. retas o valor de F cai novamente e o desvio padrão aumenta. Pela análise dos resíduos destas retas fica evidente a necessidade de introdução de têrmos de ordem superior em $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$, de acôrdo com o resultado do teste da melhor ordem polinomial de ajuste, e, em consequência, o teste em questão deixa de ser válido para estas "retas".

Devido ao decréscimo sistemático do coeficiente angular das retas seguintes à reta de referência e ao aumento de F para as mesmas, torna-se mais seguro restringir-se ao intervalo de variação de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ dado pela reta de referência, apesar de seu maior desvio padrão, pois nêste intervalo não há nenhuma indicação que acuse a absorção dos eletrons de conversão. Esta conclusão é reforçada pela distribuição equilibrada dos resíduos da reta de referência.

Nestas condições foi imposto um limite superior para $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ de 0,5, que corresponde aproximadamente à espessura de 2 mg/cm^2, nas retas utilizadas para a determinação de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$.

II.6. Determinação de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$

Determinou-se 4 retas a partir de 4 fontes, preparadas como descrito em II.3. e selecionadas dentre outras por apresentarem eficiências beta mais altas. Foram medidas observando-se os limites de espessura imposto em II.5 e seus dados tratados de acôrdo com II.4 (fig. 11).

Consideramos conveniente comparar o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ obtido no IEA com o determinado por J.G.V. Taylor,, antes de procedermos à comparação de α, devido principalmente a um desacôrdo quanto ao valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para o raio gama de 279 Kev do Tl^{203}.

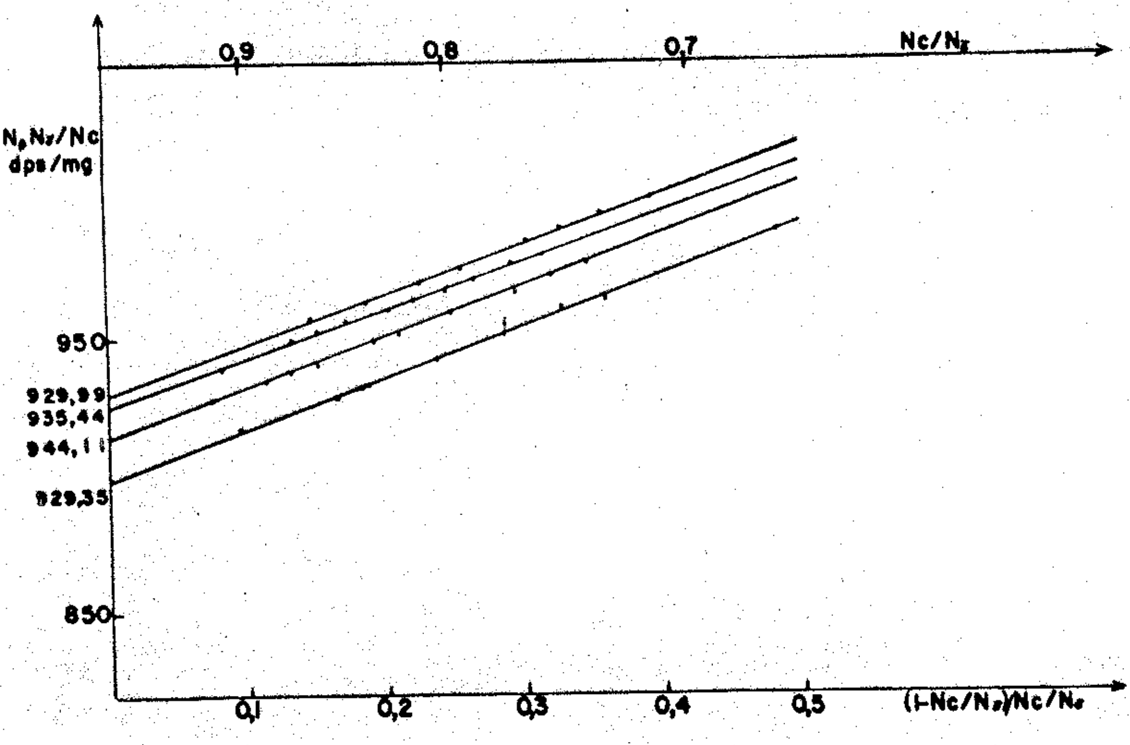


Figura 11

Retas utilizadas para a determinação de $(\alpha + \varepsilon_{\beta\gamma})/(1 + \alpha)$
A escala indicada no eixo das ordenadas refere-se à primeira reta. A escala para cada uma das outras está deslocada de 10,20 e 30 dps/ /mg em relação à indicada, respectivamente. Os êrros estatísticos de contagem, quando não indicados, estão contidos nos próprios pontos. A igualdade dos coeficientes angulares destas retas divididos pelos respectivos valores extrapolados, foi testada estatìsticamente.

Para se determinar o valor médio de$(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ deve-se fazer uma média ponderada dos valores obtidos para cada reta. Os pêsos devem ser tomados como $1/\sigma_i^2$, onde σ_i é o desvio padrão em $[(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)]_i$ onde $i = 1,2,3,4$. Entretanto, as retas foram determinadas a partir de fontes diferentes e medidas com uma técnica cujos efeitos se pretende verificar. Nestas condições convém examinar se não foi introduzido em algumas delas um êrro sistemático, que não fôsse comum a tôdas as quatro, ou seja, se todos os valores obtidos de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ são iguais, considerando-se o êrro estatístico de contagem nos pontos da reta e os resíduos dos ajustes.

Com êste objetivo utilizou-se o teste estatístico para a verificação da igualdade de coeficientes angulares, mencionado em II.5 e desenvolvido no Apêndice, aplicando-o simultâneamente para as quatro retas, no intervalo de variação de $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ fixado em II.5.

Como nêste caso o resultado final do teste é dado em apenas um quadro de análise da variância, transcrevêmo-lo aqui, na forma como é fornecido pelo computador:

Análise da Variância

Fonte	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Soma de Quadrados média	Razão F	
b	.86821163E+05	1	.86821163E+05	.24136432E+05	$F_{(1,30,0.95)}$ 4,17
b_i/b	.12924000E+02	3	.43080000E+01	.11976314E+01	$F_{(3,30,0.95)}$ 2,92
Resíduo	.10791300E+03	30	.35971000E+01		
Total	.86942000E+05	34			

O que interessa no caso é o segundo valor da razão F, ou seja, F = 1,20, que é menor do que o valor tabelado $F_{(3,30,0.95)} = 2,92$, significando que a hipótese do teste pode ser aceita, isto é, que $b_1 = b_2 = b_3 = b_4 = b$, onde os $b_i = \left(\frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}\right)_i$ são os coeficientes de $x = (1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$, nas retas ajustadas da forma:

$$\hat{y}_{iu} = a_i \, (1 + b_i \, x_{iu})$$

onde $i = 1,2,3,4$

e $u = 1,2....n_i$

sendo n_i o número de pontos da $i^{\text{ésima}}$ reta.

Assim sendo torna-se lícito utilizar uma função do êrro estatístico, $(\frac{1}{\sigma_i^2})$, como pêso na média de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$, uma vez que pelo teste não há evidência de que se está introduzindo êrros sistemáticos diferentes nos 4 valores de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$, ou seja, as fontes individuais não introduzem êrro sistemático, como ainda, o método da variação do parâmetro de eficiência se introduzir êrros variáveis de fonte para fonte, êstes não são significativos em face aos êrros estatísticos.

Poder-se-ia utilizar o valor do b da hipótese, como média de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$, porém êste representa uma média não ponderada, e, no caso presente é importante que se leve em conta no resultado final o desvio padrão dos valores dos b_i. Por êste motivo o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ foi calculado como média ponderada convencional com pêsos $1/\sigma_i^2$.

Os valores da meia vida do Hg^{203} geralmente adotados, entre 1956 e 1965, foram 46,91 dias (Ei56), 47,1 dias (Th57), ou, ainda, a média dêstes valores, 47,0 dias. Entretanto, em 1964, foi determinado para a referida meia-vida o valor de 46,6 dias (GL64), tendo sido confirmado pelo National Bureau of Standards, no ano seguinte, que o precisou em $(46,57 \pm 0,03)$ dias (AN65). Em virtude dessa ocorrência, calculamos $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ e, portanto, α, para $t_{1/2} = 47,0$ dias e $t_{1/2} = 46,57$ dias, afim de obter um valor comparável com os demais e, outro, obedecendo à recomendação do NBS.

Como indica a tabela II, o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ obtido no IEA coincide com o de J.G.V. Taylor, dentro do êrro experimental. Comprova-se assim, que a técnica da variação do parâmetro de eficiência, desenvolvida no LMN do IEA, utilizando seu sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$, não introduz êrro sistemático significativo e, por outro lado, confirma o resultado de J.G.V. Taylor.

Estas conclusões são ainda reforçadas pelo acôrdo, dentro do êrro experimental, entre os resultados da medida absoluta da atividade específica da solução de Hg^{203} obtidos pelo IEA e pelo Laboratório de Seibersdorf, utilizando êste último, o método de coincidência convencional com correção para esquema de desintegração e, portanto, introduzindo os parâmetros nucleares necessários.

Tabela II

Fonte	Atividade específica da solução de Hg^{203} $T_{1/2}$=46,57d (dps/mg)	$\frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}$ $T_{1/2}$=46,57 d	$\frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}$ $T_{1/2}$=47,0 d
1	944,11 ± 0,24	0,1904 ± 0,0019	0,1886 ± 0,0019
2	929,34 ± 1,07	0,1913 ± 0,0051	0,1875 ± 0,0046
3	935,44 ± 0,24	0,1860 ± 0,0016	0,1840 ± 0,0016
4	929,99 ± 0,62	0,1942 ± 0,0027	0,1883 ± 0,0025
Média Ponderada	938,9 ± 2,9	0,1890 ± 0,0016	0,1864 ± 0,0012
Comparação com outros Laboratórios	937,2 ± 2,8 *	-	0,1862 ± 0,0015 **
Diferença	1,7 ± 4,1	-	0,0002 ± 0,0019

* Valor da atividade específica da solução de Hg^{203} obtido no Laboratório de Seibersdorf da Agência Internacional de Energia Atômica

** Valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ apresentado por J.G.V. Taylor (Ta62)

II.7. Estimativa do valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para o Hg^{203}

A eficiência do contador beta para raios gama é devida à detecção dos elétrons emitidos quando da interação dos fotons com as paredes do detector, com o gás de contagem, com o filme suporte da fonte e com a própria fonte. Os dois últimos efeitos são desprezíveis quando se utiliza filmes e fontes convencionais para medidas de alta precisão em detector 4π·(Ur67). A interação dos raios gama com as paredes do contador e com o gás de contagem depende sobretudo do número atômico do gás e do material do contador, assim como, da geometria do detector e da energia da radiação gama.

As primeiras determinações experimentais da referida eficiência foram realizadas pelo método mais direto possível, ou seja, medindo no detector beta uma fonte beta-gama, de atividade conhecida, coberta com absorvedores suficientemente espessos para a absorção de tôda a radiação beta, e, assumindo que a contagem registrada seja devida apenas à sensibilidade do contador beta para os raios gama. Ao determinar os valores de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para alguns radionuclídeos, P. J. Campion (Ca59) considerou a possibilidade de resposta do contador beta para efeitos secundários : o da interação gama com o material do absorvedor e o de bremsstrahlung. Entretanto, pelas experiências que realizou na época, concluiu que ambos os efeitos eram desprezíveis, principalmente no caso do Hg^{203}, em que a energia beta é baixa, exigindo espessuras não muito grandes para ser totalmente absorvida. O valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para o Hg^{203} determinado por Campion, utilizando absorvedores de polietileno, foi de aproximadamente 0,3 %.

Por êste mesmo método, porém, utilizando absorvedores de alumínio, obteve-se para o detector $4\pi\beta$(PC) do IEA cêrca de 0,4 % para $\varepsilon_{\beta_\gamma}$. Na figura 12 observa-se que para espessuras do absorvedor para as quais tôda a radiação beta e os eletrons de conversão já foram discriminados, a contagem do contador beta tende a aumentar, confirmando o efeito da interação gama, o qual para energias e quantidades de material das ordens de grandeza consideradas, cresce com a espessura do absorvedor.

Em 1963 A. Williams e P.J. Campion (Wi63) reconsideraram o efeito da interação gama com o absorvedor e utilizando a técnica de variação do parâmetro de eficiência (na equação (II 4) observa-se que no caso de $\alpha \simeq 0$, o coeficiente angular da reta de eficiência fornece $\varepsilon_{\beta_\gamma}$) redeterminaram o valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para vários nuclídeos (fig. 12), mostrando que conforme as energias em jôgo , são menores, por fatôres maiores do que 2 ou 3, do que os originalmente determinados.

O levantamento de uma curva de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ em função da energia gama por êste último método apresenta grandes dificuldades devido ao pequeno efeito que se propõe medir e pelo reduzido número de nuclídeos de esquema de desintegração e energia gama convenientes para tal medida. Embora a determinação desta curva

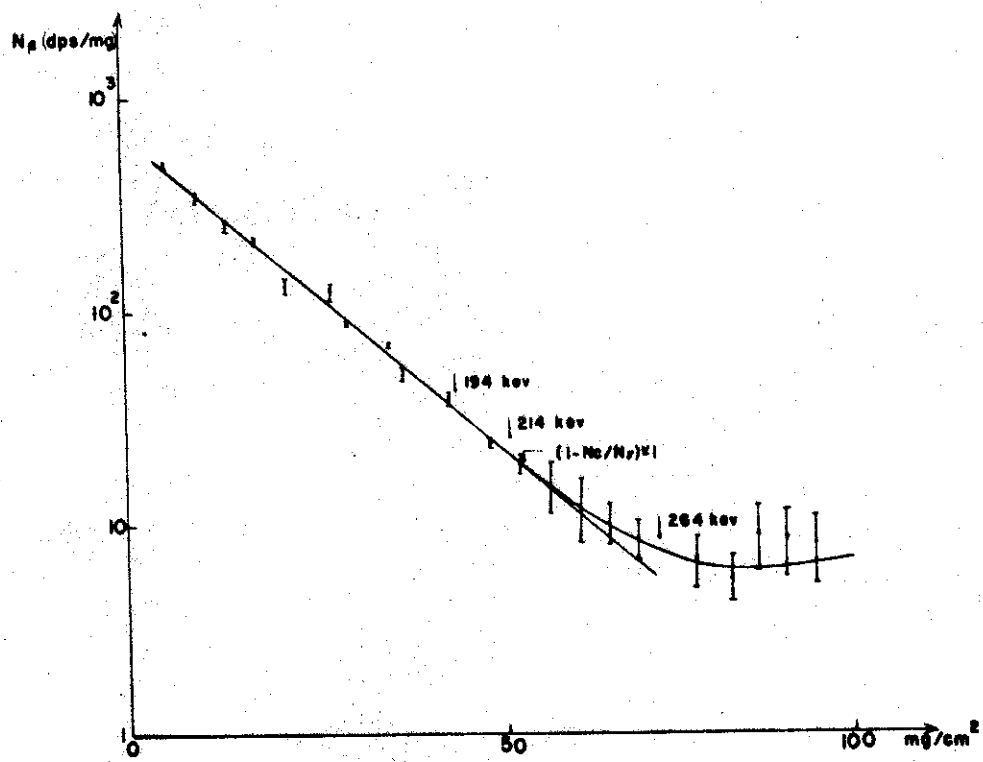


Figura 12

Curva de Absorção beta para o Hg^{203}
Esta curva foi obtida utilizando-se os valores de N_β da região final da curva de eficiência da figura 9 e as espessuras dos absorvedores correspondentes. As flechas indicam as espessuras equivalentes ao alcance calculado do beta 214 Kev e dos eletrons de conversão de 194 e 264 Kev, assim como, o ponto onde a eficiência beta se anula. A contagem beta diminue atingindo um mínimo em cêrca de 5 contagens por segundo e por miligrama para depois tender a subir devido ao aumento do efeito da interação gama com a espessura dos absorvedores. O valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ somado a êste efeito é de cêrca de 0,4 %.

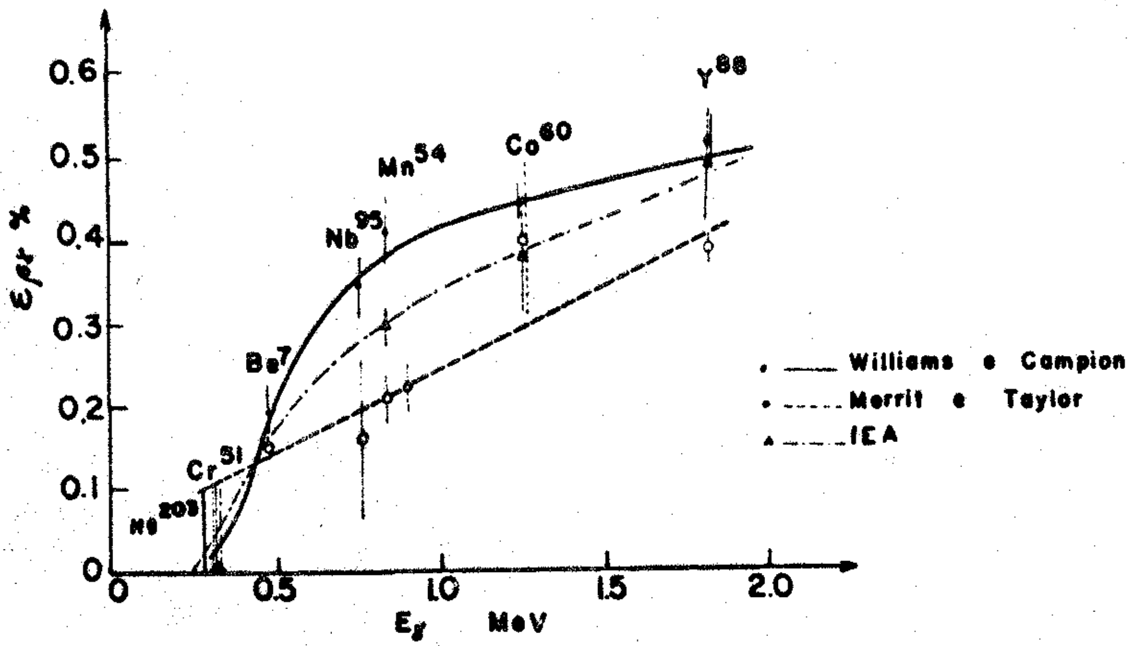


Figura 13

Curva da eficiência gama do detector beta versus a energia gama. A curva cheia é devida a A. Williams e P.J. Campion (Wi63), a reta a J.S. Merrit e J.G.V. Taylor (Me67) e a pontilhada ao LMN do IEA. Os êrros na determinação destas curvas chegam a mais de 50% em alguns pontos. Nas três determinações foi obtido o valor zero para o gama de 320 Kev do Cr^{51}, tendo-lhe sido atribuído um limite superior de cêrca de 0,1 %.

fuja ao âmbito do presente trabalho, apresentamo-la aqui afim de justificar o valor atribuído a $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ para o Hg^{203}. Seu aspecto é mostrado na figura 13, onde estão representados os pontos determinados por A. Williams e P.J. Campion, por J.S. Merrit e J.G.V. Taylor e pelo LMN do IEA. Observa-se em seu comportamento, de acôrdo com as conclusões semi-empíricas de vários autores na década de quarenta, entre êles B.B.Rossi e H.H. Staub (Ro49), que o valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ decresce com a energia gama, aproximando-se do zero para o Cr^{51}, cuja energia gama é de 320 Kev. Baseados nesta curva estimamos o valor de 0,02 % para $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ do Hg^{203}, com um êrro correspondente ao limite superior estimado para o Cr^{51}, ou seja,de 0,1 %.

Para a determinação de α, J.G.V. Taylor determinou $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ pelo método primitivo, que era na época o único conhecido, obtendo-o igual a 0,21 % *. Em 1964 , J.G.V. Taylor comunicou a alteração dêste valor para 0,12 % **, segundo informa o trabalho de C.J. Herrlander e R.L.Graham (He64) onde é utilizado o valor de α determinado por aquêle autor. Pela reta da figura 13 publicada por J.S. Merrit e J.G.V. Taylor (Me67) deduz-se que êste valor sofreu ainda uma pequena alteração de cêrca de 0,02 % para menos.

Desta forma os valores de α determinados pelos laboratórios de Chalk River e do IEA só podem ser comparados a menos de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$, apesar da pequena diferença que o valor desta probabilidade introduz na determinação do coeficiente de conversão interna do Tl^{203}.

II.8. Resultados finais

Os resultados para o coeficiente de conversão total α e o coeficiente de conversão parcial α_k da transição de 279 Kev do Tl^{203} obtidos no IEA para $t_{1/2}$= 47,0 dias e $t_{1/2}$= 46,57 dias e para $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ = 0,21 % e $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ = 0,02 % são apresentados na tabela III, juntamente com os resultados de J.G.V. Taylor.

Para a comparação dos resultados obtidos pelo método de coincidência generalizado no sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$ com os obtidos por outras técnicas de medida e com os valores teóricos, que se referem sempre ao coeficiente de conversão parcial K, usamos, como J.G.V. Taylor e outros autores que determinaram o coeficiente de conversão total, o valor de 2,60 $\pm$ 0,06 para a razão de conversão interna K/L + M + N, determinado por Nijgh et al. (Ni58).

---

* Em seu trabalho J.G.V. Taylor especifica o valor $(\varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ = (1,7 $\pm$ 0,2) x 10^{-3}. Para deduzirmos o valor de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ utilizamos α = 0,2262 $\pm$ 0,0019 (ver tabela IV).

** Deduzimos êste valor utilizando α = 0,2273 $\pm$ 0,0023 comunicado por J.G.V. Taylor (He64) e o valor de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ publicado por êste autor (Ta62)

Tabela III

Procedência	$T_{1/2}$	$\varepsilon_{\beta_\gamma}$	$\frac{\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma}}{1 + \alpha}$	α	α_k
J.G.V. Taylor		0.0021 ± 0.0002	0.1862 ± 0.0015	0.2262 ± 0.0019	0.1633 ± 0.0017
IEA	47.0	0.0021 ± 0.0002	0.1864 ± 0.0012	0.2265 ± 0.0019	0.1636 ± 0.0017
IEA		0.0002 ± 0.001	0.1864 ± 0.0012	0.2290 ± 0.0019	0.1654 ± 0.0017
IEA	46.57	0.0002 ± 0.001	0.1890 ± 0.0016	0.2330 ± 0.0027	0.1683 ± 0.0022

Na tabela III observa-se que as diferenças entre os resultados dos coeficientes de conversão interna obtidos por J.G.V. Taylor e pelo IEA são desprezíveis, como era de se esperar pelos resultados de $(\alpha + \varepsilon_{\beta_\gamma})/(1 + \alpha)$ e pelo fato de que no caso presente, a incerteza que ainda persiste na determinação de $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ não chega a superar os êrros experimentais em α e α_k, os quais são da ordem de 1 %.

Nota-se entretanto, que uma diferença mais significativa nos coeficientes de conversão interna é devida aos diferentes valores atribuídos à meia vida do Hg^{203}.

A partir da determinação por A.H. Wapstra e G.J. Nijgh (Wa56) do coeficiente de conversão interna K da transição de 279 Kev do Tl^{203}, que se constituiu em uma das primeiras evidências experimentais dos efeitos de dimensão finita do núcleo, esta determinação tornou-se de especial interêsse, tendo sido realizada por vários autores utilizando diferentes métodos. Teòricamente, êste coeficiente de conversão foi calculado por M.E.Rose, a princípio pela aproximação do núcleo pontual (Ro51) e, mais tarde, para núcleo de dimensão finita (Ro58). M.A. Sliv que já havia previsto que o efeito de dimensão finita do nú cleo seria particularmente grande para a camada K e transições M_1 de elementos de alto número atômico (S155), calculou, juntamente com I.M. Band, êste coeficiente para a transição mista $M_1 + E_2$ do Tl^{203}, considerando um modêlo particular do núcleo (S158). Os três valores de α_k assim calculados não coincidindo com os valores experimentais, indicam uma forte influência da estrutura nuclear para o referido nuclídeo.

Os resultados encontrados na literatura, juntamente com os métodos utilizados, estão apresentados na tabela IV. A maioria das medidas realizadas entre 1948 e 1955, assim como, aquelas obtidas pelo método XPG, ou seja, por comparação da intensidade dos raios X com a dos raios gama em espectrômetro de cintilação forneceram valores semelhantes ou maiores do que os valores teóricos. As determinações dêstes últimos 10 anos utilizando espectrômetro magnético e os métodos PBS (pico de conversão K-espectro beta), CEI (conversão interna-externa), NPG (pico de conversão K normalizado - pico gama) e outros, apresentam um bom acôrdo entre si. Em consequência, o coeficiente de conversão K da transição em questão é considerado como bem estabelecido, tendo-lhe sido atribuído o valor de 0,163 $\pm$ 0,002 (ND65), que é cêrca de 10 % e 7 % inferior aos valores calculados por M.E.Rose, 0,1795, e M.A.Sliv, 0,1749, respectivamente.

Os resultados do IEA que constam da tabela IV foram calculados para $t_{1/2}$= = 47,0 dias e $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ = 0,02 %.

Nota-se na tabela IV que o êrro nas determinações de α e α_k pelo método de coincidência generalizado é menor do que o dos demais métodos. Se no futuro fôr possível determinar $\varepsilon_{\beta_\gamma}$ com maior precisão, êste método tornar-se-á susceptível de fornecer o referido coeficiente de conversão com maior precisão e acuidade do que as demais técnicas, principalmente, por não introduzir outros parâmetros nucleares, com excessão, naturalmente, da meia vida do Hg^{203}, e por ser absoluto, não introduzindo, portanto, êrros de calibração.

Dado o acôrdo dos valores de α e α_k, obtidos em Chalk River e no IEA, com os valores determinados por várias outras técnicas, como se pode constar na tabela IV, conclui-se que o método de coincidência pela variação do parâmetro de eficiência não introduz êrro sistemático significativo.

Na tabela III incluimos os valores de α e α_k calculados para a meia vida do Hg^{203} recomendada recentemente pelo NBS, de 46,57 dias, e que, portanto, podem ser considerados como os melhores valores de α e α_k obtidos no IEA:

Tabela IV

Autores	Referência	Método	$\alpha_k \times 10^{-3}$	$\alpha \times 10^{-3}$
11 Determinações 1948 - 1955		vários	140 - 230	
Wapstra e Nijgh	(Wa56)	PBS	164 $\pm$ 5	
Nordling, Siegbahn, Sokolowski e Wapstra	(No56)	PBS	159 $\pm$ 4	
Wolfson	(Wo56)	PBS	130 $\pm$ 10	
O'Friel e Weber	(OF56)	$e_k e_c$ *4	150 $\pm$ 10	
Nijgh, Wapstra, Ornstein, Salomons-Grober, Huizenga, Almen	(Ni59a)	PBS	163 $\pm$ 3	226 $\pm$ 5
Peelle	(Pe60)	Cβe *5	164 $\pm$ 6	227 $\pm$ 8
Stockendal	(St60)	IEC	160 $\pm$ 15	
Ramaswany e Jastram	(Ra60)	XPG	195 $\pm$ 14	
Hurley e Forguson	(Hu61)	XPG	175 $\pm$ 3,6	
Sujkowski	(Su61)	IEC	164 $\pm$ 4	
Taylor	(Ta62)	Cβγ *6	164,2 $\pm$ 2,0 *3 163,3 $\pm$ 1,7	227,3 $\pm$ 2,3 *3 226,2 $\pm$ 1,9
Croft, Petterson, Hamilton	(Cr63)	Cβγ-$Ce_k X$ *7	162 $\pm$ 3	
Burmeister, Graber Schintlmeister, Weibrecht	(Bu63)	XPG	168 $\pm$ 8	
Baumgartner, Walthert, Huber	(Wa65)	NPG	160 $\pm$ 10 *2	222 $\pm$ 15
Raja Rao Jnanananda	(Rj65)	IEC	150 $\pm$ 20 158 $\pm$ 24	208 $\pm$ 14 219 $\pm$ 16
Parsignault	(Pa65)	PBS	163,0 $\pm$ 3,0	
Boch, Szichman, Baseggio, Dolinkue	(Bo67)	$C\beta e_k$ *8	140 $\pm$ 30	
Herrlander e Graham	(He64)	NPG	163 $\pm$ 3 *1	
Êste Trabalho		Cβγ	165 $\pm$ 2	229 $\pm$ 2

*1 O autor deduziu êste valor usando α = 0,2273 $\pm$ 0,0023 fornecido por J.G.V.Taylor

*2 Deduzido utilizando α_k = 0.163 $\pm$ 0.002 (ND65)

*3 Valor citado em (He64); α_k foi deduzido dêste para K/L+M+N = 2,60 $\pm$ 0,06

*4 Eletron de conversão K - eletron Compton

*5 Coincidência β-e soma

*6 Coincidência 4πβ(PC)-γ

*7 Coincidência β-γ, coincidência e_k-X

*8 Coincidência β - e_k

$\boxed{\alpha = 0.2330 \pm 0.0027}$ $\boxed{\alpha_k = 0.1683 \pm 0.0022}$

É interessante observar na tabela IV que os valores fornecidos pelo método XPG em espectrômetro de cintilação, método êste que independe da meia vida, são mais altos do que os fornecidos pelos outros métodos que, utilizando espectrômetro magnético, dependem, em alguns casos, criticamente, da constante de desintegração do nuclídeo em estudo. Seria, portanto, de interêsse conhecer êstes resultados calculados para a meia vida atualmente atribuída ao Hg^{203}, a fim de verificar se não existe um melhor acôrdo entre os valores experimentais e teóricos do coeficiente de conversão K da transição de 279 Kev do Tl^{203}.

CONCLUSÕES

Quanto à técnica e ao método

1) A técnica de medida pela variação do parâmetro de eficiência desenvolvida no IEA fornece resultados consistentes com os obtidos no Laboratório de Chalk River. Portanto, o sistema $4\pi\beta(PC)-\gamma$ e a técnica do IEA não introduzem êrro sistemático significativo nêste tipo de medida.

2) O método de coincidência generalizado particularizado para nuclídeos com um só ramo de desintegração fornece resultados consistentes entre si e consistentes com outros métodos de medida. Portanto, o método em questão, não introduzindo êrro sistemático nêste caso particular, permite o prosseguimento das investigações para os casos mais gerais.

3) Por outro lado, fica comprovada a possibilidade de determinação do coeficiente de conversão interna total para transições de nuclídeos de características de desintegração especiais. Para tais radionuclídeos o método de coincidência generalizado é suscetível de fornecer valores do coeficiente de conversão interna total mais precisos que os obtidos pelos demais métodos. Quanto ao êrro sistemático, que no caso tratado é desprezível, dependerá êste da acuidade com que fôr possível determinar a eficiência gama do detetor beta.

Quanto aos valores dos coeficientes de conversão interna da transição de

<u>279 Kev do Tl^{203}</u>

O presente trabalho

1) confirma os resultados obtidos por J.G.V. Taylor,
2) contribui com um novo valor para o coeficiente de conversão interna total da referida transição,
3) fornece valores para os coeficientes de conversão interna total, α , e parcial, α_k, desta transição, de acôrdo com o valor atribuído recentemente à meia vida do Hg^{203}, pelo National Bureau of Standards.

APÊNDICE

Teste para a verificação da igualdade do coeficiente angular de várias retas pela análise da variância

Considerando o modêlo linear abaixo, o desenvolvimento que se segue propõe-se ao teste * da igualdade dos coeficientes β_i de x em m retas dadas.

$$y_{iu} = \alpha_i(1 + \beta_i x_{iu}) + \varepsilon_{iu} \qquad i = 1,2,\ldots m$$

Sejam os dados

$$x_{i1}\ ,\ x_{i2}\ ,\ x_{i3}\ \ldots\ldots\ x_{in_i} \qquad \text{(fixos)}$$

$$y_{i1}\ ,\ y_{i2}\ ,\ y_{i3}\ \ldots\ldots\ y_{in_i}$$

com pesos $\omega_{i1}\ ,\ \omega_{i2}\ ,\ \omega_{i3}\ \ldots\ldots\ \omega_{in}$ onde $\omega_{iu} = \dfrac{1}{\sigma^2_{iu}}$

e, sendo os ε_{iu} independentes, com distribuição $\sim N(0,\sigma^2_{iu})$

A estimativa dos β_i pelo método dos mínimos quadrados ponderado é neste caso :

---

* Encontra-se êste teste para pontos não ponderados e o modêlo $y_{iu}=\alpha_i + \beta_i x_{iu} + \varepsilon_{iu}$ em que ε_{iu} tem distribuição $\sim N(0,\sigma^2)$ na referência (Dr66)

$$b_i = \frac{1}{a_i} \; \frac{\sum\limits_{u=1} \omega_{iu} y_{iu} x_{iu} - (\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu})(\sum\limits_u \omega_{iu} y_{iu}) \; / \; \sum\limits_u \omega_{iu}}{\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu}^2 - (\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu})^2 \; / \; \sum\limits_u \omega_{iu}}$$

onde a_i é a estimativa de α_i pelo método dos mínimos quadrados.

Então, a soma de quadrados devido à regressão, com 1 grau de liberdade, é:

$$SS(b_i) = b_i^2 \left[\sum_u \omega_{iu} x_{iu}^2 - (\sum_u \omega_{iu} x_{iu})^2 \; / \; \sum_u \omega_{iu} \right]$$

e a soma de quadrados total, com (n_i-1) graus de liberdade,

$$SS_{iTot} = \sum_{u=1} y_{iu}^2 \, \omega_{iu} - (\sum_u \omega_{iu} \, y_{iu})^2 \; / \; \sum_u \omega_{iu}$$

e, ainda, a soma de quadrados residual, com (n_i-2) graus de liberdade,

$$S_i = SS_{iTot} - SS(b_i)$$

Fazendo a hipótese H_o de que $\beta_i = \beta$ para todos os i, então a estimativa de β pelo m.m.q. será:

$$b = \frac{\sum\limits_{i=1} a_i \left[\sum\limits_u \omega_{iu} y_{iu} x_{iu} - (\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu})(\sum\limits_u \omega_{iu} y_{iu}) \; / \; \sum\limits_u \omega_{iu} \right]}{\sum\limits_{i=1} a_i^2 \left[\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu}^2 - (\sum\limits_u \omega_{iu} x_{iu})^2 \; / \; \sum\limits_u \omega_{iu} \right]}$$

com a soma de quadrados, com 1 grau de liberdade,

$$SS(b) = b^2 \sum_i a_i^2 \left[\sum_u \omega_{iu} x_{iu}^2 - (\sum_u \omega_{iu} x_{iu})^2 \; / \; \sum_u \omega_{iu} \right]$$

A soma de quadrados residual, com Σn_i-2 graus de liberdade, é dada por:

$$S = \sum_i SS_{Tot} - SS(b)$$

O quadro da análise da variância pode ser formado, como abaixo:

Análise da Variância

Fonte	Soma de Quadrados	Graus de Liberdade	Soma de Quadrados Média	F
b	SS(b)	1	$M_1 = SS(b)$	$F_1 = M_1/S^2$
Todos b_i/b	$\sum_{i=1} SS(b_i) - SS(b)$	m-1	$M_2 = \frac{\sum_u SS(b_i) - SS(b)}{m-1}$	$F_2 = M_2/S^2$
Resíduo	por diferença	$\sum_{i=1} n_i - 2m$	S^2	
Total	$\sum_{i=1} SS_{i_{Tot}}$	$\sum_{i=1} n_i - m$		

A hipótese $H_o : \beta_i = \beta$ é testada comparando-se F_2 com o valor tabelado de $F \left[(m-1), \left(\sum_i n_i - 2m\right)\right]$ da distribuição de Snedecor (No64), a um nível conveniente, em geral, de 95 %.

Se $F_2 > F_{tabelado}$ rejeita-se a hipótese $H_o : \beta_i = \beta$ com confiança maior do que 95%

Se $F_2 < F_{tabelado}$ conclue-se que com base nos dados em questão não se pode rejeitar a hipótese; portanto, aceita-se $H_o : \beta_i = \beta$

Se H_o não for rejeitada, b pode ser usado como o coeficiente angular comum das retas testadas. F_1 é utilizado apenas quando convém testar a hipótese $\beta_i = \beta = 0$

Para êste teste foi elaborado no Serviço de Cálculo Analógico e Digital do IEA um programa para o Computador IBM-1620, cuja listagem apresentamos abaixo.

```
C
C     TESTE DE HIPOTESE   -  COEFICIENTES ANGULARES IGUAIS
C
C
C     NRETA - NUMERO DE RETAS CUJOS COEFICIENTES SERAO TEST
         ADOS
C     NFIM=0  -  INDICA QUE HA NOVO CONJUNTO   DE RETAS A SER
          TESTADO
C     N- NUMERO DE PONTOS A SEREM AJUSTADOS
C     NPESO-VARIAVEL QUE DEFINE COMO  ENTRA O PESO
C     NPESO=1,LE DIRETAMENTE O PESO
C     NPESO DIFERENTE DE 1 - LE O DESVIO PARA SER ENTAO CAL
         CULADO O PESO
C     PESO =1./DESVIO**2
C
C
      DIMENSION X(30),Y(30),W(30),B1(10),STI(10)
    1 READ 1000,NRETA,NFIM
      NN=0
      AA=0
      SSSBI=0
      SSTOTI=0
      SOMAN1=0
      SOMAD1=0
      TOMAN1=0
      TOMAD1=0
      DO 50 IR=1,NRETA
      READ 1000,N,NPESO
      ENE=N
      NN=NN+N
      IF(NPESO-1)2,11,2
    2 DO 10 I=1,N
      READ 1001,X(I),Y(I),W(I)
      W(I)=1./(W(I)*W(I))
   10 CONTINUE
      GO TO 20
   11 DO 20 I=1,N
      READ 1001,X(I),Y(I),W(I)
   20 CONTINUE
      SW=0
      SWX=0
      SWY=0
      SWX2=0
      SWY2=0
      SWXY=0
      DO 30 J=1,N
      SW=W(J)+SW
      SWX=W(J)*X(J)+SWX
      SWY=W(J)*Y(J)+SWY
      SWX2=W(J)*X(J)*X(J)+SWX2
      SWXY=W(J)*X(J)*Y(J)+SWXY
      SWY2=W(J)*Y(J)*Y(J)+SWY2
   30 CONTINUE
      AN1=SWX2*SWY-SWXY*SWX
      AD1=SW*SWX2-SWX*SWX
      A=AN1/AD1
      AA=AA+A
      BN1=SWXY-SWX*SWY/SW
      BD1=SWX2-SWX*SWX/SW
```

```
      BBN1=SW*SWXY-SWX*SWY
      BBD1=SW*SWX2-SWX*SWX
      B1(IR)=BBN1/BBD1
      BL=B1(IR)/A
      PRINT 1008,A,BL
      DO 40 II=1,N
      YC=A+B1(IR)*X(II)
      DESV=Y(II)-YC
      PRINT 1009,X(II),Y(II),YC,DESV
   40 CONTINUE
      SSBI=B1(IR)*B1(IR)*BD1
      SSSBI=SSSBI+SSBI
C
C     CALCULO DE SSTOT PARA CADA RETA =STI(I)
C
      STI(IR)=SWY2-SWY*SWY/SW
C
C     CALCULO DA SOMATORIA DE SSTOTAL PARA AS NRETA
C
      SSTOTI=SSTOTI+STI(IR)
C
C      CALCULO DE SI PARA CADA RETA
C
      STI(IR)=STI(IR)-SSBI
      SOMAN1=SOMAN1+BN1*A
      SOMAD1=SOMAD1+BD1*A*A
   50 CONTINUE
C
C     CALCULO DO COEFICIENTE B
C
      B=SOMAN1/SOMAD1
C
C     CALCULO DE SS(B)
C
      SSB=B*B*SOMAD1
C
C     CALCULO DE S
C
      S=SSTOTI-SSB
C
C     DIFERENCA ENTRE SOMA DOS SS(BI) E SS(B)
C
      DIF1=SSSBI-SSB
      RESID=SSTOTI-SSSBI
      N1=1
      BMA1=NRETA-1
      DS2=NN-2*NRETA
      S2=RESID/DS2
      RETA=NRETA
      A=AA/RETA
      DP=(S2/(A*A))**.5
      PRINT 1010,B,DP
      F=SSB/S2
      PRINT 1003,SSB,N1,SSB,F
      BM2=DIF1/BMA1
      F=BM2/S2
      PRINT 1004,DIF1,BMA1,BM2,F
      PRINT 1005,RESID,DS2,S2
      GL=NN-NRETA
```

```
      PRINT 1006,SSTOTI,GL
1000 FORMAT(5I3)
1001 FORMAT(3E14.8)
1003 FORMAT(1H1,61X,20HANALISE DA VARIANCIA//1H ,3X,5HFONT
         E,9X,17HSOMA
    1DE QUADRADOS,3X,18HGRAUS DE LIBERDADE,3X,17HSOMA DE Q
         UADRADOS,8X,1
    2HF/1H ,63X,5HMEDIA//1H ,5X,1HB,13X,E14.8,11X,I4,12X,E
         14.8,3X,E14.8
    3//)
1004 FORMAT(1H ,2X,6HB(I)/B,11X,E14.8,11X,I4,12X,E14.8,3X,
         E14.8//)
1005 FORMAT(1H ,1X,7HRESIDUO,11X,E14.8,11X,I4,12X,E14.8,//
         )
1006 FORMAT(1H ,3X,5HTOTAL,11X,E14.8,11X,I4//)
1008 FORMAT(1H0,10X,44HOS COEFICIENTES DA RETA AJUSTADA Y=
         A*(1+B*X)//1H
    1X,20X,3HA =,E14.8/1H ,20X,3HB =,E14.8///1H ,7X,5HXDAD
         O,12X,5HYDADO
    2,10X,10HYCALCULADO,9X,6HDESVIO/)
1009 FORMAT(1H ,4(3X,E14.8))
1010 FORMAT(1H0,33H PARA O COEFICIENTE B DA HIPOTESE/1H ,5
         X,2HB=,E14.8/
    11H ,4X,3HDP=,E14.8///)
      IF(NFIM)41,1,41
  41 CALL EXIT
      END
```

BIBLIOGRAFIA

(Ad67) Adams, R.J., Baerg, A.P. - Standardization of Radionuclides AIEA - Proceedings, 123 (1967)

(An65) Anspach,S.C., Cavallo, L.M., Garfinkel, S.B., Hutchinson, J.M.R. , Smith, C.N. - Half-lives of Materials Used in the Preparation of Standard Reference Materials of 19 Radioactive Nuclides issued by the National Bureau of Standards, N.B.S. NP - 15663 (1965)

(Ba64) Baerg, A.P., Meghir, S., Bowes, G.C. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes 15, 279 (1964)

(Ba66) Baerg, A.P. - Metrologia 2, 23 (1966)

(Bo67) Boch, H.E., Szichman,E., Baseggio, A., Dolinkue, R. - Nucl. Instr. and Meth. 52, 289 (1967)

(Bu63) Burmeister,R., Graber,H., Schintlmeister,J., Weibrecht - Nucl. Phys. 42, 56 (1963)

(Br61) Brinkman, G.A. - Standardization of Radioisotopes - Thesis, University of Amsterdam (1961)

(Ca59) Campion, P.J. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes, 4, 232 (1959)

(Ca60) Campion, P.J., Taylor, J.G.V., Merrit, J.S. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes, 8-9 (1960)

(Ca69) Campion, P.J. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes 19 ,219 (1969)

(Cp67) Camp, D.C. - U.C.R.L. - 50156 (1967)

(Cr63) Croft, W.L., Pettersson, B.G., Hamilton, J.H. - Nucl. Phys. 48,267 (1963)

(CT58) Measurements and Standards of Radioactivity - National Academy of Science, NRC. 573 (1958)

(CV60) Metrology of Radionuclides - IAEA Proceedings (1960)

(CV67) Standardization of Radionuclides - IAEA Proceedings (1967)

(CW50) Conference on Absolute β-Counting, Report 8 Nuclear Science Series, N.R.C. (1950)

(Dr66) Draper, N.R., Smith, H. - Applied Regression Analysis - John Wiley & Sons, 39 (1966)

(Du40) Dunworth, J.V. - Rev. Sci. Instr., 11, 167 (1940)

(Ei56) Eichholz, G.G., Krzyzewski, J.V. - Can. J. Phys. 34, 1167 (1956)

(Ga61) Gandy, A. - Preparation et Etalonnages des Sources Radioactives de Reference - AIEA Monograph 14 (1961)

(Ga62) Gandy, A. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes , 13, 501 (1962)

(Gr55) Green, A.E.S. - Nuclear Physics - McGraw-Hill Book Company 390 (1955)

(Gl64) Gleason, G.I. - Comunicação particular; vide ref. (Le65)

(He64) Herrlander, C.J., Graham, R.L. - Nucl. Phys. 58 (1964)

(Ho62) Houtermans, H., Miguel, M. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes 13, 137 (1962)

(Hu61) Hurley, J.P., Ferguson, J.M. - Nucl. Phys. 27, 75 (1961)

(Jo64) Johnson, N.L., Leone, F.C. - Statistics and Experimental Design John Wiley & Sons, vol. 1, 123 (1964)

(Le67) Lederer, C.M., Hollander, J.M., Perlman, I. - Table of Isotopes 6º Edition - John Wiley & Sons (1967)

(Me59) Merrit, J.S., Taylor, J.G.V., Campion, P.J. - Can. J. Chem., 37, 1159 (1959)

(Me60) Merrit, J.S., Taylor, J.G.V., Merrit, W.F., Campion, P.J. - Analyt. Chem. 32, 310 (1960)

(Me67) Merrit, J.S., Taylor, J.G.V. - Standardization of Radionuclides IAEA Proceedings, 147 (1967)

(Mo65) Moura, L.P., Reis, D.C.C. - Publicação IEA 121, 14 (1965)

(Mo67a) Moura, L.P., Reis, D.C.C. - Publicação IEA 152, 59 (1967)

(Mo66) Moura, L.P., Reis, D.C.C. - Publicação IEA 152, 51 (1967)

(Mo69) Moura, L.P. - Em publicação

(Mü67) Müller, J.W., Rytz, A. - Report on the International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of Co^{60} - Bureau International des Poids et Mesures (1967)

(ND66) Nuclear Data - NRC - Section A - vol 1 447 (1966)

(Ni59) Nijgh, G.J., Wapstra, A.H. - Nucl. Phys. 9, 545 (1958/1959)

(Ni59a) Nijgh, G.J., Wapstra, A.H., Ornstein, L.Th.M., Salomons-Grobben,N., Huizenga, J.R., Almen,O. - Nucl. Phys., 9, 528 (1958/1959)

(No56) Nordling,C., Siegbahn, K., Sokolowski, E., Wapstra, A.H. - Nucl. Phys., 1, 326 (1956)

(ND65) Nuclear Data Sheets 1959-1965 - NRC 5-2-95 (1965)

(OF56) O'Friel, Z., Weber, A.H. - Phys. Rev. 101, 1076 (1956)

(Pa55) Pate, B.D., Yaffe, L., - Can. J. Chem. 33, 610 (1955)

(Pa65) Parsignault, D. - CEA-R 2631 (1965)

(Pe60) Peelle, R.W. - ORNL-3016, 116 (1960)

(Pu50) Putman, J.L. - Brit. J. Radiol. 23, 46 (1950)

(Ra60) Ramaswany, M.K., Jastram, P.S. - Nucl. Phys. 15, 510 (1960)

(Re67a) Reis, D.C.C., Moura, L.P. - Publicação IEA 152, 67 (1967)

(Re67b) Reis, D.C.C., Moura, L.P. - Publicação IEA 152, 27 (1967)

(Re67c) Reis, D.C.C., Moura, L.P. - Publicação IEA 152, 41 (1967)

(Rj65) Raja Rao, M., Jnanananda,S. - Nucl. Instr. and Meth., 36, 261 (1965)

(Ro69) de Roost, E., Funck, E., Spernol,A. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes, 20, 387 (1969)

(Ro51) Rose, M.E., Goertzel, G.H., Spinrad, B.I., Harr, J., Strong, P. - Phys. Rev. 83, 59 (1951)

(Ro58) Rose, M.E. - Internal Conversion Coefficients - North-Holland Publ. Co. XI (1958)

(Ro49) Rossi,B.B., Staub,H.H. -Ionization chamber and counters- vol.2,103 McGraw-Hill (1949)

(Si55) Siegbahn, K. - Beta and Gamma Ray Spectroscopy - North-Holland Publ. Co., Ch. I e Ch. XVIII (1955)

(Sl58) Sliv, S.A., Band, I.M. - Tables of Gamma Ray Coversion Coefficients (Physics Technical Institute) - Academy of Science, Leningrad (1958)

(St58) Steyn, J., Haasbroek, F.J. - Second U.N. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, P/1104 (1958)

(St60) Stockendal - Ark. Fys. 17, 579 (1960)

(Su61) Sujkowski, Z. - Ark. Fys. 20, 243 (1961)

(SL55) Sliv,L.A. J. Phys. Rad. 16, 523 (1955)

(Su61) Sujkowski, Z. - Ark. Fys. 20, 243 (1961)

(Ta62) Taylor, J.G.V. - Can. J. Phys. 40, 383 (1962)

(Ta62a) Taylor, J.G.V. - Can. J. Phys. 40, 926 (1962)

(Th66) Thomas,J. - Risö Report 142 (1966)

(Th57) Thiry, H. - Bull. Soc. Roy. Sci. Liège 26,29 (1957)

(Ur67) Urguhart,D.F. - Standardization of Radionuclides IAEA Proceedings, 167 (1967)

(Wa56) Wapstra, A.H., Nijgh, G.J. - Nucl. Phys. 1, 245 (1956)

(Wa65) von Walthert, A., Baumgartner, E., Huber, P. - Helv. Phys. Acta, 38, 514 (1965)

(Wi63) Williams, A., Campion, P.J. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes, 14, 533 (1963)

(Wi64) Williams, A. - Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes, 15, 709 (1964)

(Wi68) Williams, A., Hugues, F.H., Campion, P.J. - Metrologia 4, 178 (1968)

(Wo56) Wolfson, J.L. - Can. J. Phys. 34, 256 (1956)