

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**Desenvolvimento de um método para obtenção da eficiência de detecção
para detectores HPGe em medidas com fontes extensas**

Roberto Manuel dos Santos

**Dissertação apresentada como parte dos requisitos
para obtenção do Grau de Mestre em ciências na área
de Tecnologia Nuclear – Aplicações.**

Orientador:

Dr. Frederico Antonio Genezini

São Paulo

2012

O solitário busca o seu próprio interesse e insurge-se contra a verdadeira sabedoria.
(provérbio Salomão)

Dedico este trabalho à minha mãe
Marcela; irmãos Ambrósio, Manuel,
Vitória e Mateus.

À minha esposa Ana Paula.

Agradecimentos

Direta ou indiretamente inúmeras pessoas contribuíram para que este trabalho fosse possível. Em particular gostaria de agradecer:

O Dr. Frederico Antonio Genezini, pela orientação, incentivo, dedicação e apoio indispensáveis para a realização deste trabalho.

Ao Dr. Guilherme pela amizade e auxílio no desenvolvimento deste trabalho bem como pelas contribuições em diversas etapas do trabalho.

Aos colegas Rodrigo, Laura pela amizade e incentivo para que este momento fosse possível.

A Dra. Mitiko Saiki do LAN pela disponibilidade das instalações.

A Regina Ticianelli pela ajuda na manipulação e pesagem dos padrões.

Aos funcionários da CPG pela colaboração.

Ao IPEN/CEN por possibilitar a realização deste trabalho.

A Ana Paula e minha filha Ana Clara pelo amor, carinho e companheirismo.

Ao irmão Mateus e cunhada Maria da Nazaré pelo apoio.

Aos meus amigos, Fábio, Gervásio e Joaquim Dias pelo apoio, carinho e amizade.

A todos que a minha memória por lapso não conseguiu incluir nesta lista, mas que merecem um carinhoso reconhecimento.

DESENVOLVIMENTO DE UM MÉTODO PARA OBTENÇÃO DA EFICIÊNCIA DE DETECÇÃO PARA DETECTORE HPGe EM MEDIDAS COM FONTES EXTENSAS

Roberto Manuel dos Santos

RESUMO

Um dos grandes desafios em medidas de espectrometria gama utilizando fontes que não podem ser consideradas pontuais é a determinação da eficiência de detecção do sistema, uma vez que a geometria da fonte impõe complexidades na tarefa como o tratamento do ângulo sólido e da auto-absorção. Alguns métodos para o cálculo dessa eficiência já são bem estabelecidos e podem ser encontrados na literatura. Neste trabalho é proposto um método com características distintas aos já existentes cujas principais vantagens são, não depender de conhecimento prévio da geometria de detecção e da composição química da amostra a ser medida, e permitir o cálculo da eficiência de uma fonte extensa a partir de medidas com fontes padrão em formato pontual. O método proposto foi testado comparando os valores das eficiências obtidas por ele com os valores obtidos usando uma fonte padrão extensa. Para testar o método proposto em diferentes condições foi utilizado solo como matriz para a amostra em duas diferentes espessuras, 1cm e 3cm. Testou-se também o comportamento do método quando a matriz tem número atômico efetivo mais alto (aqui utilizou-se solo misturado à limalha de ferro) e mais baixo (adição de pó de grafite ao solo). Os resultados indicaram que o método é adequado para amostras de solo com espessura mais fina; já para fontes mais espessas, dois dos três resultados indicaram que a eficiência foi subestimada pelo método proposto, sugerindo que uma geometria mais adequada deva ser escolhida para a amostragem das medidas

DEVELOPMENT OF A METHOD FOR OBTAINING THE EFFICIENCY OF DETECTION IN HPG_e DETECTOR WITH MEASURES LARGE SOURCES

Roberto Manuel dos Santos

ABSTRACT

One of the greatest challenges in gamma spectroscopy measurements using extensive sources is the determination of the system's detection efficiency, since the source's geometry leads to added complexity to the treatment of parameters as geometry and self-absorption. Some well-established methods for the efficiency determination can be found in the literature. In the present work a method with distinct characteristics is proposed with the main advantages that it doesn't require previous knowledge of the detection geometry or of the sample composition; moreover, it allows the determination of the detection efficiency for a large sample based only on measurements using a point-like standard source. The proposed method was tested comparing the efficiency values obtained using the method with the values obtained using a real large source with the same composition and geometry. In order to verify the performance of the method under different conditions, soil matrixes of two different thicknesses (1cm and 3cm) were used; also, to assess the method under different sample compositions, 3cm-thick soil matrixes with increased effective atomic number (where iron filings were added) and with reduced effective atomic mass (where graphite powder was added) were used. The results indicate that the proposed method is suitable for thinner soil samples; as for thicker samples, two of the three results showed a subestimation of the detection efficiency value determined, suggesting that a more suitable sampling geometry should be analyzed.

.

SUMÁRIO

Capítulo 1 - Introdução	1
Capítulo 2-Revisão da literatura	4
2.1. Introdução	4
2.1.1. Ângulo sólido	5
2.1.2. Auto-absorção	6
2.1.3. Retroespalhamento	10
2.1.4. Empilhamento	11
2.1.5. Efeito soma	11
2.2. Métodos da Literatura	12
2.2.1. Método Relativo	13
2.2.2. Método de Monte Carlo	14
2.2.3. Método semi-empírico	15
Capítulo 3- Método proposto	17
3.1. Introdução	17
3.2. Eficiência Experimental	17
3.3. Composição das eficiências	18
3.4. Teste do método	21
Capítulo 4-Materiais e Métodos	24
4.1. Materiais utilizados	24
4.1.1. Radionuclídeos padronizados	24
4.1.2. Matriz utilizada;	25
4.1.3. Confeção das peças suporte	27
4.2. Preparação das amostras e dos padrões	28
4.2.1. Calibração da pipeta	28
4.2.2. Pesagem e dopagem do solo	29
4.2.3. Homogeneização do solo dopado	32
4.3. Espectrômetro gama	32
4.4. Aquisição de dados	34
4.4.1. Matriz: solo	35
4.4.2. Matriz solo com grafite	35

4.4.3. Matriz solo com limalha de ferro	36
4.5. Análise de dados	36
4.5.1. Ajuste dos fotopicos	36
4.5.2. Cálculo das eficiências com o método	37
Capítulo 5-Resultados e discussões	39
5.1. Uniformidade do padrão	39
5.2. Espessura de 1cm	40
5.2.1. Resultados	40
5.2.2. Ajustes e interpolações	41
5.2 Espessura de 3 cm	46
5.3. Variação do número atômico	53
5.3.1. Matriz de grafite	53
5.3.2. Matriz solo+limalha de ferro	58
5.4. Observação sobre o método	63
5.4.1. Sobre a grade de pontos	64
5.4.2 Sobre a função de eficiência	68
5.4.3 Sobre as incertezs	69
Conclusões	70
Referências bibliográficas	72

LISTA DE FIGURAS

	Página
Figura 1. Exemplo da diferença de ângulo sólido entre duas configurações de fontes: a) fonte pontual e b) fonte extensa.	6
Figura 2. Coeficiente de atenuação de massa para fótons em função da energia para o chumbo [Loveland, 2006].	9
Figura 3. Variação da energia do fóton espalhado com o ângulo (KNOLL, 2000).	10
Figura 4 - Disposição geométrica para medida da eficiência.	18
Figura 5. Gabarito para mapeamento espacial da eficiência.	22
Figura 6. Descrição esquemática da geometria da fonte pontual.	25
Figura 7. Fotografias das peças utilizadas na aplicação do método.	28
Figura 8. Ajuste para calibração da pipeta.	29
Figura 9. Fotografia da peça com amostra selada.	32
Figura 10. Desenho da posição do porta-amostras.	33
Figura 11. visão lateral da amostra sobre o porta - amostra com a fonte pontual posicionada sob a amostra.	33
Figura 12 a-d. Detector utilizado e sua blindagem.	34
Figura 13. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto.	42
Figura 14. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo1.	42
Figura 15. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2.	43
Figura 16. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa.	43
Figura 17. Comparação entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto.	45
Figura 18. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto.	48
Figura 19. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo1.	48
Figura 20. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2.	49
Figura 21. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa.	49
Figura 22. Comparação entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto.	51
Figura 23. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto.	54
Figura 24. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo1.	55
Figura 25. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2.	55
Figura 26. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa.	59
Figura 27. Comparação via-z-score entre as eficiência obtida com padrão e com método-matriz solo+grafite (3 cm).	57
Figura 28. Dados da eficiência e com a fonte padrão extensa e pelo método proposto.	59
Figura 29. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo 1.	60
Figura 30. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2.	60
Figura 31. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa.	61

- Figura 32. Comparação via z-score entre as eficiências obtidas com padrão e com o método proposto-matriz solo +limalha de ferro (3 cm). 62
- Figura 33. Comparação via z-score entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto -matriz solo +limalha de ferro utilizando a correção(3 cm). 66

LISTA DE TABELAS

	Página
Tabela 1. Informações das fontes utilizadas.	25
Tabela 2. Composição elementar para amostra de solo utilizado.	26
Tabela 3. Composição química para amostra de solo utilizado.	26
Tabela 4. Massas do solo nas amostras de 1 e 3 cm de altura.	30
Tabela 5. Massas dos materiais nas amostras de 3 cm de altura.	30
Tabela 6. Informações sobre os radionuclídeos diluídos e suas aplicações na amostra.	31
Tabela 7. Energia e intensidade dos raios gama utilizados para cálculo da eficiência.	37
Tabela 8. Verificação da uniformidade do padrão radioativo.	39
Tabela 9. Eficiências experimentais de fonte extensa e via método proposto para amostra solo (1 cm de espessura).	40
Tabela 10. Resultados dos ajustes: Parâmetros obtidos com modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso, para amostra de solo com 1 cm de espessura.	44
Tabela 11. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para amostra de solo (1 cm de espessura).	46
Tabela 12. Eficiências experimentais de fonte extensa e via método proposto para amostra solo (3 cm de espessura).	47
Tabela 13. Resultados dos ajustes: Parâmetros obtidos com modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso, para amostra de solo com 3 cm de espessura.	50
Tabela 14. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para amostra de solo (3 cm de espessura).	52
Tabela 15. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo+grafite (3 cm de espessura).	53
Tabela 16. Resultados dos ajustes: Parâmetros obtidos com modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso, para matriz solo + grafite de 3 cm de espessura.	56
Tabela 17. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para matriz solo + grafite (3 cm de espessura).	57
Tabela 18. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo+ferro (3 cm de espessura).	58
Tabela 19. Resultados dos ajustes: Parâmetros obtidos com modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso, para matriz solo + ferro de 3 cm de espessura.	61
Tabela 20. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para matriz solo + ferro (3 cm de espessura).	62
Tabela 21. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo + ferro considerando o fator de correção (3 cm de espessura).	65

Tabela 22. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método, junto com os valores de z-score para matriz solo + ferro considerando o fator de correção (3 cm de espessura). 66

Tabela 23. Comparação dos valores de z-score entre os valores obtidos sem a ponderação e com a ponderação para matriz solo + ferro (3 cm de espessura). 67

Capítulo 1 - Introdução

Frequentemente, medidas de espectroscopia gama são utilizadas como meios analíticos para determinação de atividade de radionuclídeos. Este tipo de aplicação tem crescido junto com as áreas de estudo que a utilizam, como a radioecologia e a análise de ativação com nêutrons.

Dentre outras, uma das questões fundamentais neste tipo de medida é a determinação da eficiência de detecção do espectrômetro, e ressalta-se ainda que muitas vezes é uma tarefa árdua em virtude da diversidade de forma, densidade e materiais a serem medidos. Em algumas aplicações específicas da espectroscopia de raios gama, a medida da eficiência do detector é facilmente obtida quando a atividade da fonte é baixa ($< \text{mCi}$), as fontes a serem medidas são pequenas e a distância fonte - detector é grande o bastante para que tais fontes sejam consideradas fontes pontuais. Em oposição, para aplicações onde a atividade específica é muito baixa, como no caso de medidas ambientais, utilizam-se em geral fontes extensas e curtas distâncias fonte-detector (Huy, N. Q. et al, 2007). A primeira consequência de se ter uma fonte extensa em vez de fontes pontuais é o efeito de auto-absorção, principalmente para fótons de baixa energia. Outro efeito em se ter em conta é a natureza da medida geométrica porque as dimensões do cristal detector tornam-se comparáveis com as dimensões da fonte (Jovanovic, S., Dlabac, A., Mihaljevic, N., Vukotic, P., 1997).

Em virtude desses fatos, diversas formas para determinar a eficiência de detecção no caso de fontes extensas têm sido desenvolvidas. Os métodos apresentam variações entre si, porém existem três caminhos distintos para se obter a eficiência de fontes extensas: o do método relativo, o do método de Monte Carlo e o do método semi-empírico. O mais simples deles, o método relativo, consiste em produzir uma fonte padrão para calibração da eficiência similar à fonte a ser medida, ou seja, com o mesmo material, massa e geometria. É o método mais preciso deles, no entanto a necessidade de fontes líquidas para adicionar ao padrão, implica em dificuldades como o manuseio de tais fontes que podem ocasionar a perda na precisão da atividade utilizada. Além disso, a disponibilidade de fontes em solução líquida bem como do material a ser medido, para confecção de padrão para diferentes geometrias da fonte é também uma restrição importante (Jackman, K. R., 2004.).

O que ocorre com frequência é a calibração do sistema de detecção para uma geometria fixa, por exemplo, um béquer marinelli com certa quantidade de material a certa distância da face do detector, e esta calibração é utilizada sempre que houverem as mesmas condições de medida. A desvantagem deste procedimento é que isto limita a geometria (ou seja, a quantidade de material que pode ser usada) e o tipo de material a ser medido (deve-se utilizá-lo somente para materiais com densidades e números atômicos próximos ao da matriz utilizada na calibração).

O método de Monte Carlo, baseado em simulações numéricas onde a geometria de medida e a física da interação de fótons com a matéria são modeladas, tenta prever se o fóton é absorvido ou deixa o detector. O tempo computacional não representa uma importante restrição nos dias de hoje, mas a falta de informações precisas da geometria interna do detector e da composição química exata da amostra impõe um limite importante para esse método (Bernardes, E.M.O. et al. 2002).

O método semi-empírico é um híbrido de medidas experimentais e informações obtidas via modelos teóricos (ainda que às vezes alimentados por informações experimentais) como cálculos de interações fóton-fonte e a função resposta do detector. Casos de geometrias complexas como onde não exista simetria cilíndrica além da necessidade de informações precisas da geometria interna do detector e sua composição bem como composição da amostra são as limitações deste método.

Este trabalho propõe um método alternativo para calibração de eficiência para fontes extensas, com base na medida da eficiência de fontes padrão pontuais. Tal método, que não se encaixa na classificação supracitada, pois utiliza medidas experimentais de fontes padrão de geometria diferente da amostra para a determinação da eficiência de fontes extensas, consiste em determinar as eficiências de detecção com fontes pontuais em uma grade de pontos no espaço acima e abaixo da amostra que se deseja medir. Este trabalho, cujo objetivo é a apresentação e o teste do método para um intervalo de energia de interesse em espectroscopia gama de alta resolução, para duas geometrias diferentes (variando somente a espessura) e para três matrizes distintas (aqui foi procurado variar o número atômico dos elementos da matriz) foi escrito com a seguinte estrutura: no capítulo 2 uma revisão de alguns conceitos e dos métodos de calibração de fontes extensas encontrados na literatura é apresentada, no capítulo 3 o método proposto é detalhado, no

capítulo 4 os materiais utilizados e as medidas experimentais são descritas, no capítulo 5 os resultados e suas discussões são apresentados e o capítulo 6 contem a conclusão do trabalho e suas perspectivas. O capítulo 7 as referências bibliográficas citadas no texto em ordem alfabética de autor foram listadas.

Capítulo 2-Revisão da literatura

2.1. Introdução

Nos últimos 50 anos, detectores semicondutores de germânio de alta pureza (HPGe) e detectores de germânio dopados com lítio (Ge(Li)) têm sido os escolhidos para a espectroscopia de alta resolução do raio gama. O seu uso para realizar análises qualitativas tal como a identificação de radionuclídeos e subsequente determinação da atividade tem se tornado cada vez mais comum. Para quantificar-se a radioatividade de uma substância por meio de um detector, é necessário que se conheça a eficiência de detecção para o fotopico desejado também chamada de eficiência absoluta no fotopico. Essa eficiência representa a capacidade que o sistema de medidas tem de fazer a coleção total do raio gama e é fortemente dependente da geometria de contagem e da energia do raio gama.

$$\varepsilon(E) = \frac{Cont}{N \cdot I_\gamma} \quad 1$$

onde $\varepsilon(E)$ é a eficiência de detecção para energia E , $Cont$ são as contagens registradas pelo detector no fotopico de energia E , I_γ é a probabilidade de emissão do raio gama de energia E e N é o número total de desintegrações durante a medição Δt , dado por $\int_t^{t+\Delta t} A(t) \cdot dt$ onde $A(t)$ é a atividade da fonte emissora em função do tempo.

Eficiência é, portanto uma razão entre o número de eventos de interesse observados pelo detector com o número de eventos produzidos pelos decaimentos na amostra, conforme indica a equação 1.

Obtidos os valores das eficiências de detecção para cada energia de raio gama emitido pela fonte de calibração, é possível, pelo ajuste de uma função adequada obter um valor de eficiência para outras energias não contempladas pela fonte de calibração.

A calibração da eficiência de um detector germânio é normalmente realizada experimentalmente por meio de método relativo, no qual utiliza-se fontes de radiação com atividades muito bem conhecidas para obter a eficiência exatamente na mesma condição geométrica da medida das amostras. Em geral as fontes de calibração são fontes de tamanho limitado (tipicamente um ou dois milímetros de raio), podendo ser consideradas como geometricamente pontuais. Dificuldades aparecem quando as amostras a serem medidas têm geometria diferente da fonte de calibração. Essas dificuldades serão explicitadas nos itens a seguir:

2.1.1. Ângulo sólido

A eficiência absoluta de detecção pode ser reescrita como:

$$\varepsilon_{abs} = \varepsilon_{int} \cdot \frac{\Omega}{4\pi} \quad 2$$

onde ε_{int} é a eficiência intrínseca de detecção no fotopico, definida como a razão do número de contagens no fotopico registrado pelo detector pelo número total de fótons que atingem o detector, Ω é o ângulo sólido subtendido pelo detector.

O ângulo sólido, dado em esterradianos, é definido para uma fonte pontual por uma integral sobre toda a face do detector voltada para a fonte:

$$\Omega = \int_S \frac{\cos \alpha}{r^2} dS \quad 3$$

onde r é a distância da fonte até a face do detector, dS é um elemento de área da face e α é o ângulo formado pela normal à face do detector e a direção da fonte.

No caso de fonte volumétrica, uma segunda integração sobre todos os elementos de volume dessa fonte deve ser feita.

Na figura 1 é exemplificada a diferença de ângulo sólido entre as configurações fonte pontual e fonte extensa.

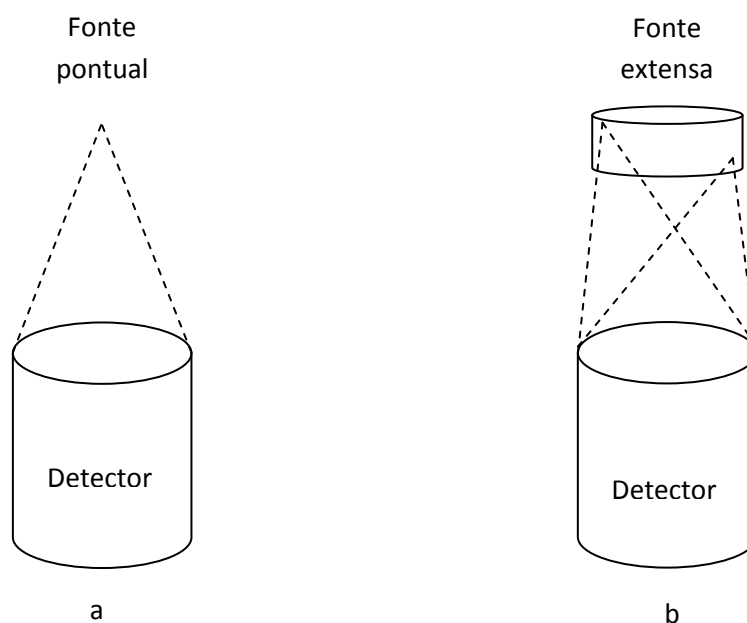


Figura 1. Exemplo da diferença de ângulo sólido entre duas configurações de fontes: a) fonte pontual e b) fonte extensa.

No caso da fonte extensa, como a atividade estará diluída ao longo do volume, a maioria dos pontos não iluminará frontalmente o detector, como no caso pontual, o que provocará a diminuição da quantidade de raios gama incidindo no detector e, portanto da eficiência. Caso se calibre o sistema com uma fonte pontual e nele sejam medidas amostras extensas, deve-se calcular o ângulo sólido nas duas configurações para que seja efetuada a correção. No entanto, o cálculo no caso da fonte extensa, mesmo em configurações mais simples como quando existe simetria cilíndrica é bastante complexo, sendo feito em geral através de métodos matemáticos (Abbas, M. I. 2006) ou numéricos (Seagusa, J. et al., 2004).

2.1.2. Auto absorção

O efeito de auto absorção pode ser facilmente entendido pelo seu nome. É a atenuação de radiação na própria fonte emissora. Ele é particularmente importante para a

radiação gama no caso de fontes extensas. Este efeito também é fortemente dependente da energia do raio gama, da constituição química do material da fonte e de sua densidade. O fator de auto-absorção tem dependência exponencial com o produto do coeficiente de atenuação linear, μ , e com a espessura da amostra.

A correção da auto-absorção pode ser calculada matematicamente. Supondo uma fonte extensa de simetria cilíndrica e altura H , que tem atividade total A_t , a atividade de um disco dh na altura h desta fonte é dada por:

$$dA = \frac{A_t}{H} dh \quad 4$$

Considerando que este disco tenha absorção do restante da fonte, a atividade aparente ou a atividade medida da fonte devida ao disco deve ser:

$$dA^m = \frac{A_t}{H} \cdot e^{-\mu h} dh \quad 5$$

Integrando de 0 até H:

$$A^m = \int_0^H dA^m = \int_0^H \frac{A_t}{H} \cdot e^{-\mu h} \cdot dh = \frac{A_t}{H\mu} (1 - e^{-\mu H}) = A_t \cdot \left(\frac{1 - e^{-\mu H}}{\mu H} \right) \quad 6$$

Portanto o fator de correção aqui chamado de f , ou ainda, o fator que multiplicará a atividade total para fornecer a atividade medida será:

$$f = \frac{A^m}{A_t} = \frac{1 - e^{-\mu H}}{\mu H} \quad 7$$

O coeficiente de atenuação linear representa a seção de choque para a interação de fótons com o meio que ele interage e é obtido pela soma das seções de choque parciais das interações dominantes na faixa de energia de interesse:

$$\mu = \sigma_{coer} + \sigma_{fot} + \sigma_{comp} + \sigma_{par} \quad 8$$

Onde σ_{coer} é a seção de choque para o espalhamento coerente, σ_{fot} é a seção de choque para absorção fotoelétrica, σ_{comp} é a seção de choque para espalhamento Compton ou incoerente e σ_{par} é a seção de choque para produção de pares. Note que aqui foi desprezada a

interação fotonuclear, pois as energias dos fótons envolvidos no estudo não são suficientes para produzir tal efeito.

Tais seções de choque são dependentes da energia do fóton, portanto usamos o coeficiente de atenuação linear como função da energia, $\mu(E)$. Esta dependência é ilustrada na figura 2.

Deve-se ressaltar que devido à dependência do coeficiente de atenuação linear com a densidade do material no qual ocorre a interação, as bases de dados, como a do NIST XCOM (Berger. M. J.,2011.) normalmente apresentam o coeficiente de atenuação mássico, que nada mais é que o coeficiente de atenuação linear dividido pela densidade do meio de interação, como é apresentado na figura 2. Se a fonte é composta por vários materiais, então esse coeficiente será a somatória da contribuição de cada um:

$$\frac{\mu}{\rho} = \sum_i a_i \cdot \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \quad 9$$

Onde a_i é a fração de cada um dos i materiais que compõem a amostra e $(\mu/\rho)_i$ o coeficiente de atenuação mássico de cada material.

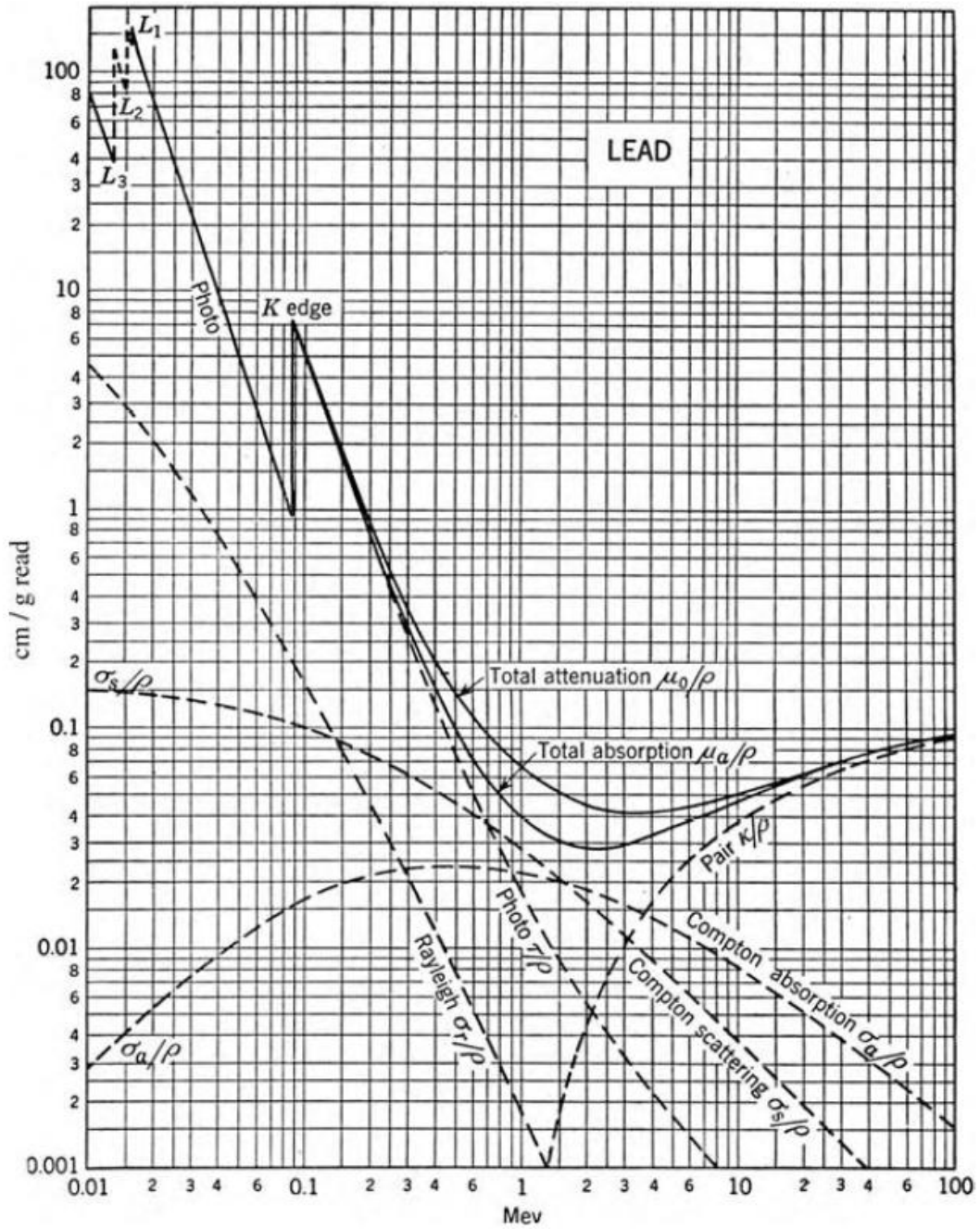


Figura 2. Coeficiente de atenuação de massa para fótons em função da energia para o chumbo [Loveland, 2006]

Métodos para correção da auto absorção são encontrados fartamente na literatura, mas em geral dividem-se em correção empírica, onde o fator de atenuação é medido no material de interesse (Bode, P. et al. 1981) e em correções numéricas, por meio do método de Monte Carlo (Oresegun, M. O., 1993, Seagusa, J. et al., 2004).

2.1.3. Retroespalhamento

Fontes extensas, dependendo da densidade, podem apresentar o efeito de retroespalhamento. Nesse efeito, parte da radiação emitida no sentido oposto à face do detector pode sofrer espalhamento, mudar de direção e atingir o detector, interferindo nas contagens de algum fotopico e, portanto alterando eficiência do sistema com relação à situação de calibração com fonte pontual. A energia do raio gama espalhado depende do ângulo de espalhamento, mas como a alteração da eficiência devido ao espalhamento na própria fonte só acontecerá em ângulos próximos a 180° , a contribuição devido a este efeito deve provocar mudanças em torno da região com energia entre 200 keV e 250 keV, dependendo fracamente da energia do fotopico original. Na figura 3 é mostrada a energia do fóton espalhado em função do ângulo de espalhamento e sua variação com a energia do fóton original.

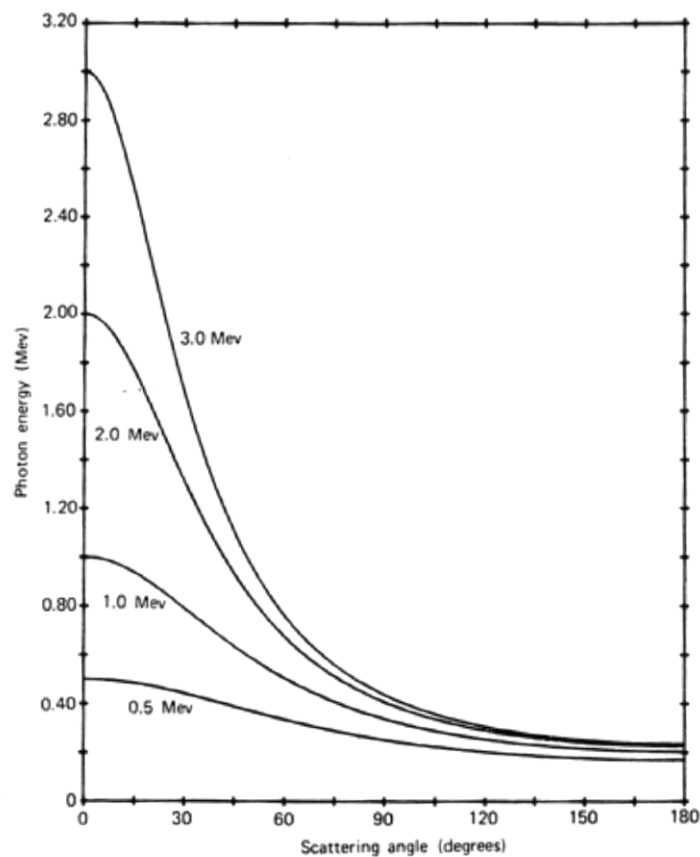


Figura 3. Variação da energia do fóton espalhado com o ângulo (KNOLL, 2000)

2.1.4. Empilhamento

O empilhamento de dois fótons não coincidentes, ou seja, não emitidos na mesma cascata de decaimento gama pode levar à diminuição do valor de eficiência calculado, pois este efeito desloca eventos do fotopico levando-os para outras regiões do espectro. Esse efeito não existe só em medidas com fontes extensas, mas na situação em que se calibra o sistema com fontes pontuais e se efetuam as correções para obter a eficiência na geometria extensa, deve-se tomar o cuidado de utilizar fontes pontuais com atividades próximas à extensa. A taxa de eventos, T_{emp} , provenientes deste efeito é dada por:

$$T_{emp} = A^2 \cdot I_1 \cdot I_2 \cdot \varepsilon_{E_1} \cdot \varepsilon_{E_2} \cdot \tau_{res} \quad 10$$

Onde A é a atividade da fonte, I_1 e I_2 são as probabilidades de emissão dos fótons 1 e 2 respectivamente, $\varepsilon(E_1)$ e $\varepsilon(E_2)$ são as eficiências nos valores de energia dos fótons 1 e 2 respectivamente e τ_{res} .

Portanto há uma dependência quadrática com a atividade da fonte.

Correções deste efeito são feitas utilizando uma fonte monoenergética como a de ^{137}Cs medida a varias distância fonte-detector.

2.1.5. Efeito soma

Só fótons coincidentes podem provocar este efeito. Assim como no empilhamento, existe neste efeito uma dependência da atividade da fonte, neste caso apenas linear, mas que também pode ocasionar erros nas calibrações com fontes pontuais corrigidas para geometria extensas no caso em que atividades muito diferentes sejam usadas. A taxa de eventos devido ao efeito soma é dada por:

$$T_{soma} = A \cdot I_1 \cdot br_{12} \cdot \varepsilon_{E_1} \cdot \varepsilon_{E_2} \cdot W(\theta_{12}) \cdot \tau_{res}$$

onde br_{12} é a probabilidade de que o fóton 2 seja emitido no mesmo decaimento que emitiu o fóton 1 e $W(\theta_{12})$ é o fator de correlação angular na emissão dos fótons 1 e 2 em cascata, sendo θ_{12} o ângulo formado pelos fótons 1 e 2.

A correção deste efeito pode ser feita a partir de parâmetros do esquema de decaimento.

Este efeito é particularmente dependente da aproximação da fonte à face do detector, pois o aumento do ângulo sólido além de aumentar a eficiência de detecção aumenta a probabilidade de emissão de dois fótons coincidentes dentro do ângulo sólido do detector. As diferenças de intensidades deste efeito entre as fontes pontuais e extensas foi estudada por AGARWAL (Agarwal, C. et al, 2011) e diferenças relativamente pequenas entre os fatores de correção foi observada para uma distância fonte-detector de 2 cm (para o fóton de 1050 keV do ^{106}Ru foi observada a maior diferença que foi de 18% mas tipicamente a diferença obtida oscilou entre 1 e 5%). No presente estudo optou-se fazer as medidas com distância fonte-detector de 10 cm de modo a minimizar qualquer interferência entre as correções na eficiência via método e via fonte padrão extensa.

2.2. Métodos na Literatura para Determinar Eficiência de Detecção de Fontes Extensas

Alguns métodos para uso de fontes extensas vêm sendo desenvolvidos nos últimos anos. Em alguns casos empregam-se esforços extensivos para gerar uma fonte de calibração com a mesma geometria de amostras extensas. Em outros casos, esforços são feitos para obter as correções necessárias para a eficiência medida com fonte pontual poder ser transferida para medidas onde a geometria da fonte envolvida é extensa. Tais métodos, que serão descritos detalhadamente a seguir, podem ser divididos em três categorias: método relativo, método Semi-empírico e método Monte Carlo.

2.2.1. Método Relativo

O método relativo é um método que consiste em aproximar, o máximo possível a amostra a ser medida, de um padrão comparativo usado para calibração (Jovanovic, S. et al. 1997). Este método é muito pouco flexível e por isso nenhuma inovação foi proposta para ele nos últimos anos e, portanto raros são os trabalhos que o descrevem e quando o fazem em geral estão utilizando-o como referência para observar outro método (Debertin, K. e Ren, J., et al, 1989), exceção ao trabalho de TASKAEVA (Taskaeva, M. et al. 1996) que propõe uma metodologia para a produção de fontes padrão extensas. Neste método, para ser suficientemente exato, o padrão deve ser similar ao da amostra no que tange à geometria e à composição. Quanto às condições de contagem, estas devem ser as mesmas para ambas as medidas (padrão e amostras). Os resultados obtidos usando esse método são os mais exatos e não podem ser superados por qualquer outro método se todos os cuidados forem tomados na confecção do padrão (Jovanovic, S. et al, 1997).

Os procedimentos do método relativo requerem o uso de padrões radioativos líquidos e o uso de mesma amostra a ser medida para a preparação do padrão radioativo (mesma composição físico-química e geometria de medida). Este procedimento de assemelhar tão bem quanto possível a amostra a ser medida esbarra em alguns problemas: os mais severos são o uso de padrões radioativos líquidos para cada amostra a ser medida, o que nem sempre é fácil de ser obtido, e o respectivo rejeito radioativo gerado após seu uso (após cada nova calibração uma quantidade de amostra dopada com material radioativo foi produzida). Outros problemas também surgem durante o processo de produção do padrão radioativo, como a imprecisão devido à perda de atividade no processo de dopagem da amostra ou a uniformidade do material radioativo que deve ser sempre verificada, pois no caso de diferenças de concentração de material radioativo em regiões do padrão podem levar a erros na medida de eficiência, e por fim a indisponibilidade de material excedente para a confecção do padrão pode também ser uma dificuldade para o uso do método.

2.2.2. Método de Monte Carlo

O método de Monte Carlo é um método que modela estatisticamente as interações de cada fóton emitido da fonte com o meio até que deixe a região de interesse ou deposite toda sua energia dentro do volume ativo do detector (Jovanovic, S. et al., 1997; Jackman, K. R. 2004). O uso deste método na determinação da resposta de um detector para fótons incidentes está a tornar-se amplamente utilizado devido aos avanços computacionais das últimas décadas e diversos trabalhos têm utilizado tal procedimento.

A determinação da eficiência para fontes extensas por este método demonstra boa concordância quando comparam-se seus resultados com os métodos semi-empíricos (Owens, A. 1989; Kmzozj e Kahn, 1994). Além disso, o método de Monte Carlo permite investigar a interação entre fótons e o volume sensível do detector incluindo efeitos considerado relevante como a presença de blindagens próximas ao detector. No seu uso encontram-se alguns problemas de modelagem devido à falta de informações precisas da geometria interna do detector e da composição química e características físico-químicas da amostra.

O trabalho de VARGAS (Vargas, M. J. et al, 2002) mostra que poucos milímetros de variação em alguns parâmetros do detector, como o diâmetro do cristal, a distância cristal-face do detector ou diâmetro da cavidade coaxial do detector podem produzir grandes variações da ordem de ~15% na eficiência de fotopico simulada. Devido às precárias informações destes parâmetros, torna-se difícil reduzir as incertezas para menos de 10% (Jackman, 2004).

Códigos de Monte Carlo bem estabelecidos são os mais usados para esta tarefa, como o MCNP, GEANT, EGS e PENELOPE, no entanto alguns grupos desenvolvem seu próprio código dedicado ao cálculo de eficiência de detecção, como o GESPECOR (Sima, O. et al, 2001) ou o DETEFF (Cornejo Diaz et al, 1998).

2.2.3. Método semi-empírico

Este é o método que maior atenção teve nos últimos 20 anos. O método semi-empírico é empregado usando uma combinação de medidas experimentais e a resposta teórica do detector. Este método é tipicamente feito usando uma medida de eficiência experimental com fontes pontuais à qual cálculos para obter as eficiências na geometria desejada são adicionados (Moens, L. et al.,1981; Jovanovic, S. et al., 1997; Gunnink, R. et al.,1992). Este processo também é conhecido como transferência de eficiência. Há diferentes tratamentos do método semi-empírico, mas apenas o tratamento simultâneo da atenuação de fóton, geometria e resposta do detector é preciso (Moens, L. et al.,1981). Existem duas formas de fazer isso, por métodos analíticos extrapolando a eficiência com fontes pontuais para as extensas e por meio de métodos numéricos onde as correções de ângulo sólido e auto absorção da amostra extensa são incluídas na eficiência determinada experimentalmente com fontes pontuais utilizando o método de Monte Carlo (são chamados de códigos semi-empíricos). Métodos analíticos também são aplicados de dois modos, o da profundidade efetiva de interação e do ângulo sólido efetivo.

O método da profundidade efetiva de interação define a eficiência tal como o produto de condições que descrevem a atenuação dos fótons, geometria de detecção e resposta do detector (Gunnink, R. et al.,1992). Neste método, faz-se a suposição de que a todas as interações com raios gama ocorrem em um único ponto do detector, e de que toda a atividade da fonte emissora também está concentrada em um único ponto. Medidas experimentais de eficiência são feitas para diversos tamanhos de cristais de modo a se ter um banco de dados de eficiências intrínsecas para diversos detectores e no intervalo de energia desejado e então aplicando correções analíticas de auto absorção com uma medida experimental para corrigir o ângulo sólido é possível obter a eficiência utilizando poucas medidas. A desvantagem de tal método é que deve-se possuir um banco de dados de eficiências intrínsecas e que esse método foi originado de modo a diminuir a tarefa experimental na determinação da eficiência e portanto certa perda de acurácia ocorre (Gunnink, R. et al.,1990 e Gunnink, R. et al.,1992).

O método do ângulo sólido efetivo faz cálculos analíticos usando descrição vetorial para determinar o ângulo sólido do arranjo com fonte extensa e a razão eficiência de fotopico por eficiência total para um cristal ideal, e por meio de comparações desses

resultados com valores de eficiência medida em geometria pontual é possível obter a eficiência para a geometria com fonte extensa. Um dos softwares disponíveis para aplicação do método é o ALGLE-PC (Jovanovic, S. et al., 1997). A exatidão é quase sempre melhor que aquela obtida com o método probabilístico (Ugletveit, F. et al., 1989; Jovanovic, S. et al., 1997; Ewa, O. O. B. et al., 2001).

Programas que utilizam simulações para obter a função resposta do detector na geometria extensa e depois transferir a eficiência experimental medida com fontes pontuais para tal geometria são conhecidos como códigos de método semi-empírico. Diversos softwares foram desenvolvidos nos últimos anos, como EFFTRAN (Vidmar, T. 2005; Jiang, S. H. et al 1998), e o ETNA (Lépy, M. C. et al., 2006)

Uma limitação à corrente dos métodos semi-empíricos é que eles têm sido utilizados apenas com fontes de geometria não complexa, tal como o ponto, o disco cilíndrico e geometrias de frascos tipo Marinelli. Uma outra limitação é que as funções semi-empíricas partem, seja em cálculos analíticos seja em simulações, de informações de parâmetros da fonte, do detector e da geometria de medida, o que sempre é permeado por erros e imprecisões.

Capítulo 3- Método proposto

3.1. Introdução

O método proposto é uma alternativa para calibração de eficiência no caso de medida com fontes extensas, com base na medida da eficiência de fontes padrão pontuais. Tal método, que não se encaixa na classificação já citada, pois utiliza medidas experimentais de fontes padrão de geometria diferente da amostra para a determinação da eficiência de fontes extensas, e não necessita de prévio conhecimento da composição química da fonte ou da geometria de medida e parâmetros internos do detector, consiste em determinar as eficiências de detecção com fontes pontuais em uma grade de pontos no espaço acima e abaixo da amostra que se deseja medir. A seguir serão apresentados os aspectos práticos e teóricos do método bem como a metodologia usada para testá-lo.

3.2. Eficiência Experimental

Para aplicação do método, a geometria escolhida para o teste do método possui simetria cilíndrica. A amostra com simetria cilíndrica deve ser posicionada com uma das faces paralela á face frontal do detector de germânio, conforme é ilustrado na figura 4. Para as medidas de eficiência, duas configurações experimentais devem ser consideradas: uma, em que a fonte pontual de calibração deve ser posicionada na superfície frontal da amostra (entre a amostra e o detector) e outra em que a fonte de calibração deve ser posicionada na superfície traseira da amostra (figura 4). Para levar em conta toda extensão plana da amostra e não seja necessário efetuar correção de ângulo sólido, várias medidas de eficiência devem ser feitas em toda a da extensão da fonte e uma eficiência média deve ser calculada. A partir desses dados, as eficiências nas duas configurações devem ser combinadas pelo método e ajustadas para todo o intervalo de energia de interesse.

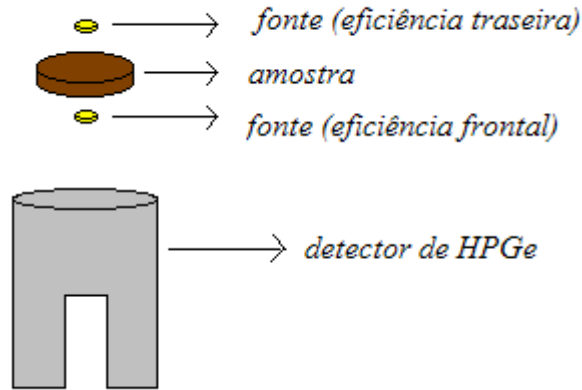


Figura 4 - Disposição geométrica para medição da eficiência.

3.3. Composição das eficiências

A idéia básica do método consiste em compor as eficiências que cada uma das configurações, a frontal e a traseira produziu por meio da raiz quadrada do produto entre elas, ou seja, por meio da média geométrica das duas configurações.

Com a equação 7 foi mostrado que é necessário fazer uma correção na atividade medida para se obter a atividade da amostra : $f=A^m/A_t$, onde $f=(1-e^{-\mu H})/\mu H$ para uma fonte de espessura H (aqui, para fins práticos será omitida a dependência de μ com a energia). Como a função é suave nesta condição, para valores de H pequenos, pode-se (para fontes com pequena extensão) fazer uma expansão em série em torno de $\mu H=0$:

$$1 - e^{-\mu H} \approx 1 - \left[1 - \frac{\mu H}{2!} + \frac{(\mu H)^2}{3!} + \dots \right] = \mu H - \frac{1}{2}(\mu H)^2 + \frac{1}{6}(\mu H)^3 + \dots \quad 12$$

Efetuada a divisão por μH , obtém-se:

$$f \approx 1 - \frac{1}{2} \mu H + \frac{1}{6} (\mu H)^2 + \dots \quad 13$$

De outro modo, a função $e^{-\frac{\mu H}{2}}$, expandida em torno de $\mu H = 0$ resulta em:

$$e^{-\frac{\mu H}{2}} \approx 1 - \frac{1}{2}\mu H + \frac{1}{8}(\mu H)^2 + \dots \quad 14$$

Utilizando a hipótese de que μH é pequeno, pode-se desconsiderar os termos de segunda ordem de modo que:

$$f \approx e^{-\frac{\mu H}{2}} \quad 15$$

No cálculo da eficiência, utilizando um caso particular da equação 1 onde a meia vida é grande o suficiente para não necessitar correção durante a medida, a atividade aparece no denominador:

$$\varepsilon^{extensa}(E) = \frac{cps}{A^m \cdot I_\gamma^E} \quad 16$$

Onde $\varepsilon^{extensa}$ é a eficiência para medidas com fontes extensas (onde ocorre sensível atenuação na própria fonte), cps é o número de contagens líquidas no fotopico de energia E por segundo e como já dito A^m é o número de decaimentos que produzem radiação efetivamente emitida pela fonte por segundo, que ao ser multiplicado por I_γ^E fornece o número de fótons de energia E emitidos pela fonte por segundo.

No entanto, o valor conhecido em uma calibração é a atividade total da fonte, de modo que a eficiência deve ser corrigida:

$$\varepsilon^{extensa}(E) = \frac{cps}{\left(\frac{A_t}{f}\right) \cdot I_\gamma^E} = \frac{cps}{A_t \cdot I_\gamma^E} \cdot f \quad 17$$

Ou seja,

$$\varepsilon^{extensa}(E) = \varepsilon(E) \cdot f = \varepsilon(E) \cdot e^{-\frac{\mu H}{2}} \quad 18$$

Portanto a eficiência da fonte extensa é equivalente à eficiência de uma fonte sem atenuação multiplicada por um fator de atenuação equivalente à atenuação causada por uma amostra com metade da espessura da original.

Outro caminho para obter essa eficiência extensa é observando que a atenuação é um efeito exponencial e, portanto, a média aritmética entre as eficiências determinadas com fontes pontuais nas posições acima (sem atenuação) e abaixo da fonte extensa (figura 4): não é um bom estimador. Utilizando a média geométrica das eficiências, tem-se:

$$\varepsilon_{extensa}(E) = \sqrt{\varepsilon_{frontal}(E) \cdot \varepsilon_{traseira}(E)} \quad 19$$

Considerando um caso ideal com um feixe de fótons paralelos, e supondo que um bom modelo para representação da eficiência em função da energia seja uma somatória de exponenciais, pode-se escrever a curva de eficiência na parte frontal como:

$$\varepsilon_{frontal}(E) = \sum_i A_i \exp(-a_i E) \quad 20$$

Onde A_i e a_i são os parâmetros ajustáveis.

Já o modelo para a curva da eficiência como função da energia na parte traseira, deve levar em conta a atenuação da radiação na amostra e, portanto deve ser dada por:

$$\varepsilon_{traseira}(E) = \left(\sum_i B_i \exp(-b_i E) \right) \exp[-\mu(E) \Delta x] \quad 21$$

Onde B_i e b_i são os parâmetros ajustáveis e Δx é a espessura efetiva de atenuação.

A “eficiência combinada” obtida com a média geométrica das duas eficiências ajustadas é:

$$\varepsilon_{extensa}(E) = \sqrt{\underbrace{\left(\sum_i A_i \cdot e^{a_i E} \right)}_{\varepsilon_{frontal}} \cdot \underbrace{\left(\sum_i B_i \cdot e^{b_i E} \cdot \exp[-\mu(E) \Delta x] \right)}_{\varepsilon_{traseira}}} \quad 22$$

Supondo, para melhor compreensão do método, que os coeficientes obtidos para os decaimentos exponenciais com a energia são muito próximos (se estiverem dentro da barra de desvio uns dos outros, isto é, $A_1 \approx B_1$, $a_1 \approx b_1$, e assim por diante), pode-se considerar as eficiências iguais explicitando o efeito de espessura :

$$\varepsilon_{extensa}(E) = \sqrt{\varepsilon_{frontal}(E) \cdot \varepsilon_{frontal}(E) \cdot \exp[-\mu(E) \Delta x]} \quad 23$$

Que leva a:

$$\varepsilon_{extensa}(E) = \varepsilon_{frontal}(E) \cdot \sqrt{\exp[-\mu(E) \Delta x]} \quad 24$$

Resultando em:

$$\varepsilon_{extensa}(E) = \varepsilon_{frontal}(E) \exp[-\mu(E) \Delta x / 2] \quad 25$$

o que significa que também se está utilizando uma eficiência efetiva, associada à camada central da amostra radioativa em estudo.

Portanto a essência do método é o cálculo da média geométrica das eficiências frontal e traseira conforme a equação 19.

3.4. Teste do método

O método foi testado por meio da comparação entre eficiências determinadas com ele e eficiências determinadas com fontes padrão extensas produzidas, conforme será apresentado no capítulo 4.

Como já dito, para o cálculo das eficiências deve-se levar em consideração toda extensão da amostra cilíndrica, de modo que várias medidas de eficiência com a fonte pontual foram feitas para levar em consideração toda a extensão das superfícies frontal e

traseira da amostra. Foram feitas medidas em diferentes raios utilizando um gabarito contendo 33 pontos semelhantes ao da figura 5. Percebe-se, observando a figura, que os raios diferiram em 1cm do anterior e em cada raio oito pontos equidistantes foram usados.

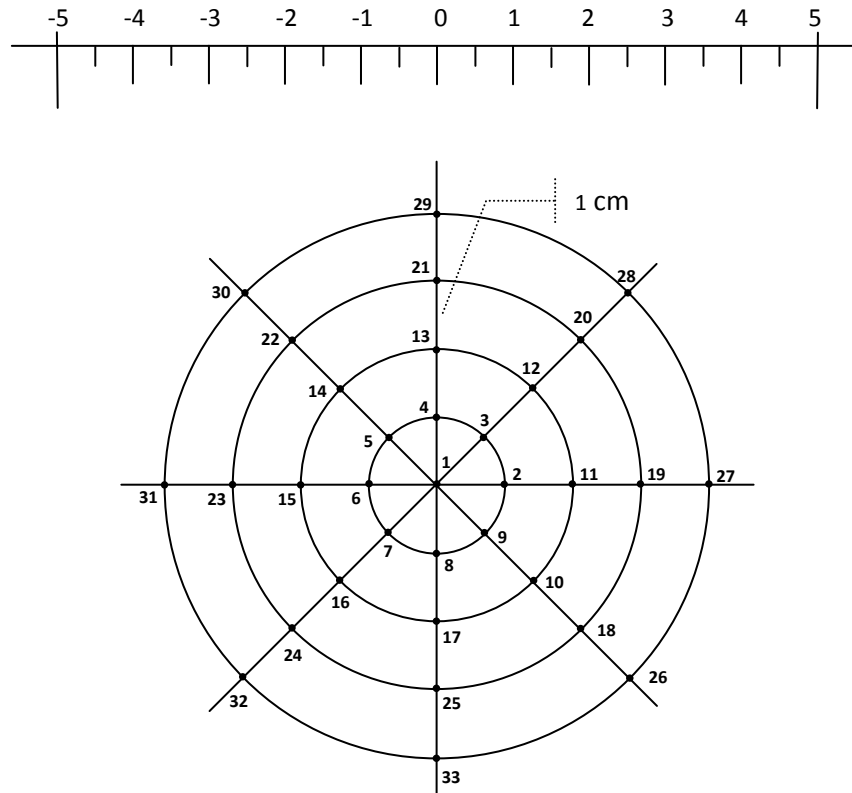


Figura 5. Gabarito para mapeamento espacial da eficiência.

Dois modos de aplicação do método foram utilizados, chamados aqui de modo 1 e modo 2. O modo 1 consistiu em obter-se para cada um dos 33 pontos a eficiência por meio do método proposto. Portanto para cada ponto foi medida a eficiência da parte frontal e da parte traseira e a partir delas calculou-se a média geométrica, resultando em 33 valores de eficiência. Em seguida a média ponderada com peso dado por $1/\sigma_1^2$ (daqui para frente chamada somente de média ponderada) foi aplicada para obter a eficiência da amostra (extensa). Já no modo 2 a média geométrica foi aplicada somente uma vez. Para tanto, a partir das eficiências de todos os pontos de uma face determinou-se a eficiência média daquela face (média ponderada) de modo que foram obtidas duas médias, a da face frontal e a da face traseira. A partir delas calculou-se a média geométrica para obter a eficiência da amostra (fonte extensa). Os dois modos de aplicação do método foram comparados com a eficiência obtida com uma fonte extensa dopada com material radioativo de atividade bem

conhecida denominado “padrão extenso”, para verificar qual deles é mais apropriado.

Os valores de eficiência experimental obtidos pelo método proposto foram comparados com os obtidos por um padrão extenso o mais semelhante possível à amostra. Essa comparação foi feita com os valores experimentais das eficiência obtidas e com os valores interpolados pelas funções ajustadas da curva de eficiência.

A validade do método foi estudada em diferentes situações. Aqui verificou-se seu comportamento em função:

- a) Da espessura da amostra. Desejou-se aqui obter o comportamento do método estudado para diferentes espessuras Δx . Para tanto foram utilizadas duas espessuras de amostra: 1,0 e 3,0 cm;

- b) Do número atômico. Além de se estudar o comportamento do método proposto em material semelhante ao usado em medidas ambientais, o solo, foi verificado seu desempenho em um material com baixo número atômico efetivo e para isso produziu-se a amostra com grafite adicionado ao solo, e de alto número atômico efetivo onde foi misturado limalha de ferro na amostra de solo.

Capítulo 4-Materiais e Métodos

Neste capítulo são descritos os materiais utilizados, desde sua preparação até as características finais das medições. Essa descrição é feita desde a escolha dos materiais e dos radionuclídeos para fontes padrão até a análise de dados medidos. As medidas para o teste do método consistem em medidas de 4 amostras distintas: uma de solo de altura 3cm, uma também de solo de altura 1cm, uma com solo misturado com grafite e outra com solo misturado com limalha de ferro, ambas com 3 cm de altura. Para teste do método, em cada diferente amostra foram feitas medidas na amostra pura usando fontes pontuais (33 medidas em cada plano), e na amostra dopada com padrão radioativo (uma medida). Esse procedimento foi feito para 3 radioisótopos nas fontes contendo somente solo e apenas com um radioisótopo nas fontes mistas (solo + grafite e solo +limalha de ferro).

4.1. Materiais utilizados

4.1.1. Radionuclídeos padronizados;

A escolha de radionuclídeos padrão foi baseada na disponibilidade da fonte em forma pontual-sólida e líquida, dentro da atividade desejada (máximo de kBq) e na condição de que o radionuclídeo da fonte padrão tivesse emissões gama recomendadas com valores de energias que cobrissem o intervalo de interesse do estudo (~50-1500 keV). Deste modo os radionuclídeos ^{166m}Ho , ^{109}Cd e ^{60}Co foram escolhidos e solicitados ao Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes do IRD na forma de fonte solida pontual e na forma de padrão líquido. A fonte pontual é selada em acrílico com o material radioativo confinado em uma cavidade central de 4 mm de diâmetro e 3 mm de altura, conforme indicado na figura 6. Todos foram calibrados no mês de junho de 2009 com as atividades apresentadas na tabela 1.

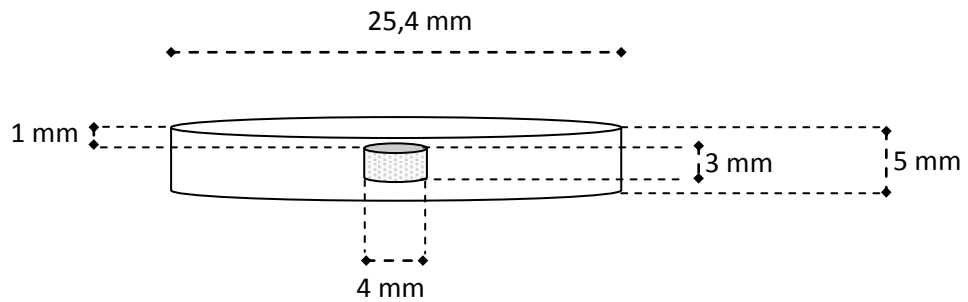


Figura 6. Descrição esquemática da geometria da fonte pontual.

Tabela 1. Informações das fontes utilizadas.

Radionuclídeo	Fontes sólidas		Fontes líquidas	
	Atividade total (kBq)	Data da calibração	Atividade específica (kBq/g)	Data da calibração
^{166m}Ho ($t_{1/2}=1200$ a)	24,41 (27)	24/06/09	52,39 (19)	17/06/09
^{109}Cd ($t_{1/2}=461$ d)	30,9 (7)	19/06/09	32,0 (7)	19/06/09
^{60}Co ($t_{1/2}=5,271$ a)	29,43 (15)	18/06/09	460,6 (9)	17/06/09

As medidas foram realizadas em intervalos menores que dois dias de modo que a correção devido ao decaimento para o ^{109}Cd , o radionuclídeo usado com menor meia vida, não representasse variação na atividade muito maior que 0,2%, bem menor que as incertezas associadas às atividades nominais.

4.1.2. Matriz utilizada

A escolha da matriz utilizada na primeira etapa foi orientada pelo objetivo de usar materiais que pudessem apresentar perceptível perturbação no fluxo de radiação gama e que tivessem utilização numa das principais aplicações de fontes extensas, as medidas de radioatividade ambiental, além de ser interessante por se tratar do teste do método ter conhecimento da composição química deste material. Para tanto, foi utilizada uma amostra

de solo de cerca 2 kg coletada em um parque público em profundidade variando de 0 a 5 cm, triturada e peneirada de modo a ficar com granulometria de 2mm e densidade média de $1,30 \text{ g/cm}^3$, analisada previamente pela técnica de Análise por Ativação Neutrônica que determinou sua composição elementar (Figueiredo, A. M. G. et. al, 2011). Os principais elementos e suas concentrações são apresentados na tabela 2. Na tabela 3 é apresentada a porcentagem dos compostos químicos presentes nesta amostra de solo.

Tabela 2. Composição elementar para amostra de solo utilizado.

Elemento	Concentração (mg/kg)	Elemento	Concentração (mg/kg)	Elemento	Concentração (mg/kg)
Fe	27690	Pb	27	Co	3,8
Zr	230	La	17,9	Sm	2,9
Ba	175	Ga	17,0	Yb	2,6
S	159	Nb	12,8	U	2,5
Ce	69	Nd	12	Cs	2,2
V	63	Y	11,2	Mo	1,2
Cr	62	Th	11,0	Ta	1,0
Zn	42	Sc	9,0	Se	0,53
Sr	36	Hf	7,6	Tb	0,49
Rb	27,5	Ni	6,6	Eu	0,42
Cu	27	As	4,6	Sb	0,42
Lu	0,34				

Tabela 3. Composição química para amostra de solo utilizado.

Composto químico	(%)	Composto químico	(%)
SiO₂	61,2	CaO	0,47
Al₂O₃	21,1	Na₂O	0,33
Fe₂O₃	4,8	MgO	0,33
P₂O₅	1,47	MnO	0,05

Composto químico	(%)	Composto químico	(%)
K₂O	0,79	Outros	8,83
TiO₂	0,63		

Na etapa de verificação do comportamento da metodologia proposta em função do número atômico dos elementos da matriz, conforme já foi citado, a escolha da amostra foi orientada com o objetivo de variar o seu número atômico, pela disponibilidade de material e pela facilidade do material absorver líquido durante a etapa de dopagem dos radionuclídeos. Foram escolhidos, seguindo os parâmetros citados, pó de grafite misturado ao solo e limalha de ferro misturada ao solo.

4.1.3. Confeção das peças suporte;

Para produzir a fonte extensa, foi necessária a confecção de recipientes para armazenar as matrizes. Tal recipiente foi confeccionado com simetria cilíndrica e o material escolhido para as peças foi PVC em formato cilíndrico (canos comercialmente encontrados) com a parede de 1,5 mm de espessura, devido ao fácil acesso a ele e às formas geométricas disponíveis no mercado e principalmente por ser um plástico composto de elementos com número atômico baixo, resultando em baixa absorção da radiação gama no intervalo de energia de interesse. Foram confeccionados dois tipos de recipientes, ambos com diâmetro de 10 cm, porém um tipo com altura de 1 cm e outro com altura de 3 cm. A base dos cilindros foi adicionada colando-se discos de acrílico de 10 cm de diâmetro e 1 mm de espessura, e após preenchimento com o material desejado, a sua parte superior foi tampada também colando-se um disco igual ao usado na base. Além dos recipientes, foi feita uma prateleira para fixar a fonte na posição de medida. Essa prateleira contém três apoios com mesma altura (6 mm) que têm como finalidade sustentar a amostra de modo que a fonte pontual possa ser movimentada durante as medidas na parte frontal (entre a prateleira e a amostra). As peças foram previamente projetadas, obedecendo aos critérios de desenho técnico e posteriormente submetidas à divisão de oficinas do IPEN para a sua confecção.



Figura 7. Fotografias das peças utilizadas na aplicação do método.

4.2. Preparação das amostras e dos padrões

4.2.1. Calibração da pipeta

A pipeta utilizada na dopagem da matriz foi calibrada previamente usando o método gravimétrico. Para tanto utilizou-se água destilada e uma balança analítica com $5\mu\text{g}$ de precisão. Foram pipetados volumes desde $50\ \mu\text{l}$ até $260\ \mu\text{l}$ com passos de $20\ \mu\text{l}$ totalizando 12 pontos. Cada ponto foi obtido pela média aritmética de 5 medidas. As densidades foram corrigidas para a temperatura ambiente. Este intervalo compreende os volumes utilizados na dopagem do solo. Ajustou-se uma função de correção para o volume, conforme indicado na figura 8.

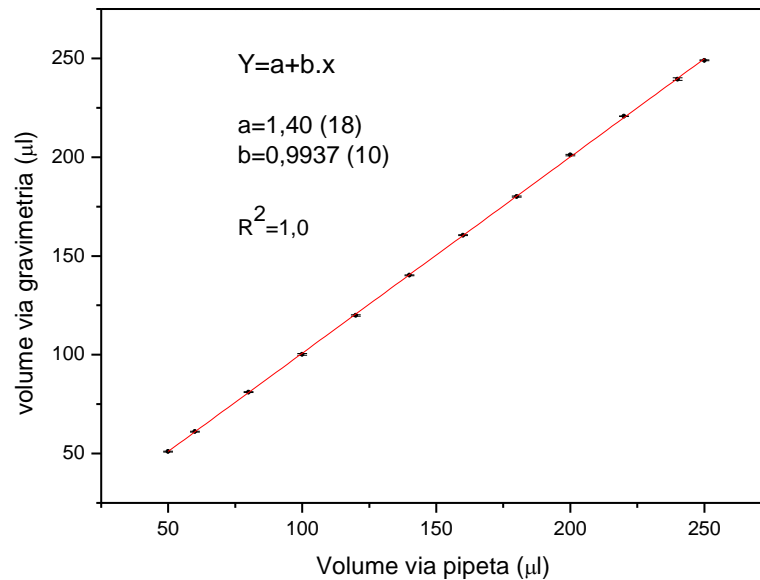


Figura 8. Ajuste para calibração da pipeta.

4.2.2. Pesagem e dopagem do solo

Foram preparadas para cada material estudado (solo de 1 e 3cm de altura, solo+grafite de 3 cm de altura e solo + limalha de ferro com 3 cm de altura) duas amostras seladas: uma não radioativa, somente com a amostra dentro do recipiente e outra com a amostra dopada com padrão radioativo.

Para obter o máximo de precisão na massa do material a ser armazenado no recipiente, fez-se a pesagem da peça e das matrizes separadamente em uma balança de precisão e após a selagem o conjunto foi pesado novamente. Processo semelhante foi feito para as matrizes que seriam dopadas com material radioativo com a diferença que a massa do recipiente com a matriz foi medida antes da dopagem. Ressalta-se ainda que as quantidades das matrizes a serem dopadas são as mesmas das não dopadas. As quantidades utilizadas estão apresentadas nas tabelas 4 e 5.

Tabela 4. Massas do solo nas amostras de 1 e 3cm de altura.

Material	Massa em g	
	3cm	1cm
Solo	189,49	95,54

Tabela 5. Massas dos materiais nas amostras compostas de 3 cm de altura.

Material	Massas (em g) e porcentagens.	
	Solo	Grafite
Solo + grafite	88,36	66,37
	57,11 %	42,89 %
Solo + Limalha de ferro	Solo	Limalha
	189,49	65,09
	74,43%	25,5%

Como já dito, para a confecção das fontes padrão extensa, foi necessário dopar as matrizes com material radioativo. Assim, as partes desejadas foram dopadas com os radionuclídeos: hólmio (^{166m}Ho), cobalto (^{60}Co) e cádmio (^{109}Cd), todos em soluções líquidas. Para medir o volume da solução padrão radioativa foi usada a pipeta previamente calibrada.

O processo de dopagem, no entanto teve que passar por uma etapa intermediária, pois para garantir boa homogeneidade na dopagem do padrão optou-se por um volume não muito pequeno depositado, ainda que isso implicasse em aumento da incerteza, garantindo assim várias dispensas da pipeta em diversos lugares da amostra. Para tanto, diluiu-se os padrões líquidos de hólmio e cobalto, inicialmente com concentrações de atividade de 52,39 (19) kBq/g em 2,6694(5) g e 460,6 (9) kBq/g em 2,5990 (5) g respectivamente, em 1 L de HCl (0,1 Molar), obtendo-se concentrações finais de 0,1398 (9) kBq/g e 1,054 (11) kBq/g respectivamente. Para o cádmio, inicialmente com concentração de atividade de

32,0 (7) kBq/g em 2,6017 (5) g, diluiu-se em 0,5 L de 0,1molar de HCl obtendo-se concentração final de 0,1656 (24) kBq/g.

Para obter as atividades finais desejadas nas amostras dopadas com padrão hólmio, cobalto e cádmio foram utilizadas as regulagens na pipeta para dispensas de 100 µl, 25 µl e 250 µl totalizando 70, 40 e 24 dispensas, respectivamente, distribuídas uniformemente. O processo de dopagem foi efetuado no próprio recipiente de medida evitando assim perda de atividade durante a troca de recipientes. Após a dopagem deixou-se a amostra em um dissecador por alguns dias até que ela secasse completamente. Após seca, utilizando um bastão de vidro o material foi misturado visando melhorar a homogeneidade. Na tabela 6 estão apresentadas as informações sobre as soluções com os padrões e sua deposição na amostra (já com volume corrigido).

Tabela 6. Informações sobre os radionuclídeos diluídos e sua aplicação na amostra.

Nuclídeos	Concentração de Atividade (kBq/g)	Volume (µl)	Atividade Total (kBq)
^{166m} Ho	0,1398 (9)	7000 (25)	0,985 (7)
⁶⁰ Co	1,054 (11)	1000 (25)	1,101 (27)
¹⁰⁹ Cd	0,1656 (24)	6000 (13)	0,993 (15)

Na etapa de variação do número atômico foi utilizado o solo junto com os materiais adicionados pois ele absorve a solução com padrão radioativo melhor que o pó de grafite e a limalha de ferro. Nessas amostras foi adicionado apenas hólmio nas mesmas quantidades das utilizadas nas amostras de solo.

Terminada as etapas de pesagem e dopagem, as amostras radioativas e não radioativas foram seladas com o disco de acrílico em seus recipientes e em suas faces circulares foram colados gabaritos com os pontos da grade para proceder as medidas de varredura segundo a grade a figura 5, isto em amostras não dopadas (figura 9).



Figura 9. Fotografia da peça com amostra selada.

4.2.3. Homogeneização do solo dopado;

Após a homogeneização das amostras dopadas, os recipientes foram selados com os discos de acrílico. Após o término de todas as medidas, a homogeneidade de um dos padrões preparados (matriz solo) foi testada para verificar se o procedimento de homogeneização foi eficiente. Utilizando uma peça de plástico em forma de cruz (confeccionada apenas para isso) separou-se a amostra em quatro partes de massas próximas. Essas partes foram pesadas, acondicionadas em um béquer de 100 ml e levadas para contagem no detector de HPGe em medidas com uma hora de duração.

4.3. Espectrômetro gama

Para as medidas das emissões gama, foi utilizado um espectrômetro gama composto por um detector de HPGe e sistema eletrônico associado. O detector de HPGe utilizado foi um Canberra GX2020. Este detector possui janela de berílio na sua superfície superior, o que permite que a atenuação de fótons seja minimizada. Possui eficiência nominal de 20% e resolução nominal de 2,0 keV na energia de 1332,5 keV. A eletrônica associada é composta por um único módulo, o *Integrated Signal Processor* modelo 1510 da Canberra, que tem a função de alimentação de alta tensão (HV), amplificação linear do sinal do pré-amplificador e de conversão analógica-digital (ADC). Esse módulo é acoplado a uma placa multicanal MCA S100 também da Canberra. O tempo de formação do pulso usado foi 2 μ s.

A aquisição deste espectrômetro é feita por meio do software Genie2000 [*Operation Manual*, 2002].

O detector fica posicionado dentro de uma blindagem de chumbo com camadas internas de cobre e estanho. Essa blindagem também é da Canberra, modelo 747.

A amostra foi posicionada o mais distante que o arranjo experimental permitiu da face do detector, a 10 cm, visando minimizar influências de efeitos como tempo morto, empilhamento e efeito soma no teste. Na figura 9 é mostrado um desenho do porta - amostras sobre o qual a amostra foi posicionada. Nela é possível notar três apoios sobre os quais a amostra fica posicionada permitindo medidas com a fonte pontual sob e sobre a amostra sem alteração de sua posição, que pode ser também visualizada nas Figuras 10 e 11.

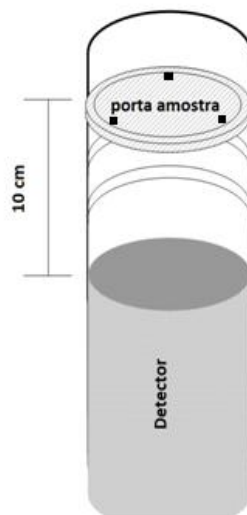


Figura 10. Desenho da posição do porta-amostras.

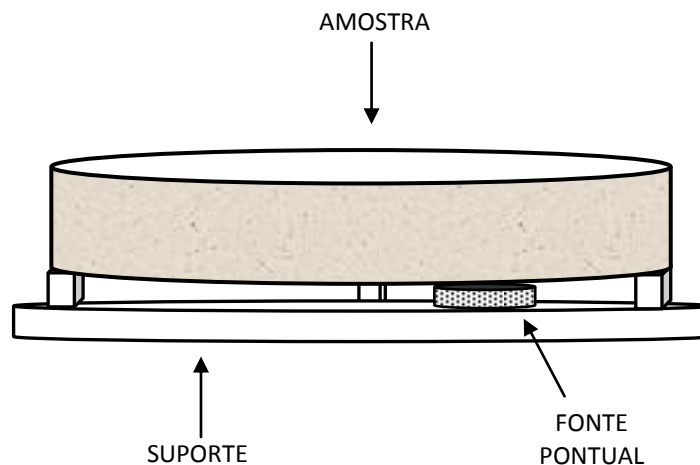


Figura 11. Visão lateral da amostra sobre o porta - amostras com a fonte pontual posicionada sob a amostra.

Na figura 12a-d é mostrada a visão externa e interna da blindagem.



Figura 12a. Visão lateral da blindagem do detector.

Figura 12b. Visão interna da blindagem e da face do detector.

Figura 12c. Amostra padrão posicionada no porta amostras.

Figura 12d. Amostra com a fonte pontual sobre sua superfície

É importante observar que as medidas com a fonte pontual entre a face do detector e a amostra foram feitas com a amostra sobre a fonte para que fosse considerado o efeito de retroespalhamento na eficiência.

4.4. Aquisição de dados

Após a selagem das amostras, a natural e a dopada, foram iniciadas as medidas para validação do método que consistiam na determinação da eficiência por duas vias: pelo método proposto e pela medida da fonte padrão extensa.

As medidas para a utilização do método foram feitas com um radionuclídeo por vez e para cada radionuclídeo procurou-se determinar a eficiência pelos dois métodos (o proposto e com padrão extenso) em no máximo dois dias, para minimizar a influência de alguma possível oscilação na eficiência de detecção ou variação da atividade de um radionuclídeo, particularmente para o ^{109}Cd (a variação da atividade em um dia é 0,15%, uma ordem de grandeza menor que a incerteza na atividade). Foram feitas as medidas para cada radionuclídeo seguindo a sequência: medidas com a fonte padrão pontual em cima da amostra em todos os pontos da grade (o gabarito estava colado sobre a amostra), medidas com a fonte padrão pontual abaixo da amostra, em todos os pontos da grade (neste caso o

gabarito estava colado na prateleira que suportava a amostra) e por fim a medida da fonte padrão extensa. Nos dias em que não foi possível concluir todas as medidas, fazia-se ao término das aquisições com fontes padrão pontual uma medida de 900 segundos com a fonte padrão extensa para comparar com a medida do dia seguinte e verificar se houve alterações significativas.

4.4.1. Matriz: solo

Inicialmente, utilizando apenas o solo como matriz, foram feitas aquisições para o ^{166m}Ho com as fontes pontuais acima e abaixo da amostra de 1 cm de altura, por 10 minutos cada ponto, resultando num total de 660 minutos de tempo vivo de aquisição. A fonte extensa foi contada por 180 minutos de tempo vivo (3 horas) o que foi considerado pouco tempo. Como a fonte dopada é única, as aquisições durante a aplicação do método para outros radionuclídeos também continham o ^{166m}Ho e então esses dados foram utilizados na análise.

Após a conclusão das medidas com o ^{166m}Ho , as medidas com o ^{60}Co foram feitas, porém para este radionuclídeo apenas 5 minutos de aquisição para cada um dos pontos da grade foram suficientes. A fonte padrão extensa, agora dopada também com o ^{60}Co foi medida durante 12 horas. E as últimas medidas da matriz solo com 1 cm, foram com o ^{109}Cd , também com tempo de aquisição de 10 minutos para cada um dos 33 pontos da grade, e a fonte padrão extensa (agora contendo ^{166m}Ho e ^{109}Cd , o ^{60}Co) também foi medida durante 12 horas de tempo vivo.

A soma das aquisições da fonte padrão extensa resultou em 27 horas de aquisição (3 horas da medida somente com o ^{166m}Ho , 12 horas da medida com o do ^{60}Co e ^{166m}Ho , e 12 horas com ^{60}Co , ^{109}Cd e ^{166m}Ho)

4.4.2. Matriz solo com grafite

O uso desta matriz se deu para obter um número atômico efetivo mais baixo que o solo, e, portanto verificar o comportamento do método em tais condições. Por isso, optou-se por aplicar o método e comparar com a fonte padrão extensa apenas com o radionuclídeo ^{166m}Ho . Neste caso, o tempo de aquisição da fonte padrão pontual para cada ponto das grades (acima e abaixo da amostra) foi também 10 minutos (660 minutos de

medida). A medida da fonte padrão extensa foi feita durante 150000s, o que corresponde a 41,67 horas de aquisição.

4.4.3. Matriz solo com limalha de ferro

A matriz de solo misturado com limalha de ferro também teve como objetivo o estudo da metodologia proposta variando o número atômico, neste caso aumentado-o com relação à matriz solo. Portanto, aqui também foi utilizado apenas o radionuclídeo ^{166m}Ho . O tempo de aquisição com a fonte padrão pontual para cada ponto das grades também foi 10 minutos (660 minutos de medida) e a fonte padrão extensa por 36000 s.

4.5. Análise de dados

4.5.1. Ajuste dos fotopicos

Para a análise dos dados foi utilizado o mesmo software que gerenciou a aquisição, o Genie 2000 (*Operation Manual*, 2002). Este software permite ao usuário escolher a sequência de operações nas análises. Aqui foi utilizada uma sequência que localiza automaticamente os fotopicos presentes em um espectro e ajusta-os utilizando a soma total das contagens.

Inicialmente o resultado foi comparado com o obtido através do software IDeFix (Gouffon, 1983) que faz ajustes de fotopicos individuais previamente localizados pelo usuário e permite que este escolha a função mais adequada para ajustar os dados experimentais de um fotopico (como o inserção de degrau ou função erro na função gaussiana). Os resultados das contagens para os 10 primeiros espectros analisados foram todos estatisticamente compatíveis o que permitiu que fosse utilizada com segurança a análise automática do software Genie2000 (*Operation Manual*, 2002). A única desvantagem observada na análise automática é que em casos de raios gama menos intensos, seus fotopicos algumas vezes não são reconhecidos pelo programa, e devido ao elevado volume de arquivos de dados não houve tempo hábil para efetuar esses ajustes manualmente.

4.5.2. Cálculo das eficiências com o método proposto

O software Genie 2000 após efetuar a análise emite um relatório em formato ASCII que pode ser importado por alguma planilha eletrônica, ferramenta usada neste trabalho para auxiliar os cálculos de eficiência.

A primeira etapa da análise foi o cálculo da eficiência nos 33 pontos da grade para cada face da amostra. De posse desses dados aplicou-se o método proposto para cada ponto da grade, utilizando a média geométrica da eficiência frontal e traseira daquele ponto, e após isso a eficiência média dos 33 pontos da grade foi calculada (essa forma de aplicação do método proposto chamou-se aqui de modo 1). Nesse formato de análise, foi necessária uma tarefa anterior: verificar para cada ponto da grade se o fotopico a ser usado teve sua área calculada pelo software nas duas configurações, em cima e abaixo da fonte extensa. Alguns fotopicos do ^{166m}Ho , devido à alta frequência com que o software não ajustou-os, principalmente na configuração acima da fonte, não foram utilizados. Na tabela 7 são apresentados os raios gama utilizados na etapa de validação da metodologia, utilizando a matriz solo.

Tabela 7. Energia e intensidade dos raios gama utilizados para cálculo da eficiência com as amostras [Helmer, R.G., 1998, Schönfeld & Dersch, 1996, 1999].

Núcleo	Energia (keV)	I γ (%)	Núcleo	Energia (keV)	I γ (%)	Núcleo	Energia (keV)	I γ (%)
^{166m}Ho	80,6	12,66(23)	^{166m}Ho	451,5	2,915(14)	^{166m}Ho	752,3	12,2(3)
^{109}Cd	88,0	3,63(2)		464,8	1,25(4)		778,8	3,01(8)
^{166m}Ho	184,4	72,5(3)		529,8	9,4(4)		810,3	57,3(1,1)
	215,9	3,105(17)		571,0	5,43(2)		830,6	9,72(18)
	259,7	1,078(1)		594,4	0,58(6)		875,7	0,721(9)
	280,5	29,54(25)		611,6	1,31(21)	^{60}Co	1173,2	99,85(22)
	300,7	3,73(3)		670,5	5,34(21)	^{166m}Ho	1241,5	0,85(3)
	365,8	2,46(4)		691,3	1,32(7)	^{60}Co	1332,5	99,98 (6)
	411,0	11,35(5)		711,7	54,9(9)	^{166m}Ho	1427,2	0,498(6)

Ainda durante o processo de verificação do método o outro modo de cálculo da eficiência média foi testado, onde a eficiência média para cada face foi calculada utilizando todos os pontos da grade e de posse das eficiências médias frontal e traseira, a média geométrica foi aplicada (chamado aqui de modo 2).

Os dois modos de aplicação do método foram comparados com as eficiências obtidas pela fonte padrão extensa através do z-score (ou zeta-score), calculado por:

$$Z = \frac{ef_p - ef_m}{\sigma_p^2 + \sigma_m^2} \quad 23$$

Onde ef_p é a eficiência obtida pela fonte padrão extensa, ef_m é a eficiência obtida pelo método e σ_p e σ_m são os respectivos desvios padrão.

Nessa primeira etapa foram utilizadas amostras de duas espessuras, 1 cm e 3 cm.

No estudo do comportamento do método com a variação do número atômico, foi utilizado apenas o ^{166m}Ho e apenas para a fonte com altura de 3 cm. No caso da matriz solo+grafite foi possível observar os mesmos raios gama do ^{166m}Ho da tabela 7. No caso da mistura solo com limalha de ferro como matriz, a transição a 875,7 keV com intensidade de 0,721(9) para cada 100 desintegrações não foi observada.

Capítulo 5-Resultados e discussões

Os primeiros resultados obtidos são referentes à validação deste método fazendo medidas com solo nas duas espessuras. São apresentados e comparados os resultados, para cada espessura, da eficiência calculada pelo método ponto a ponto e depois a eficiência média (modo 1); da eficiência calculada pelo método utilizando as eficiência médias frontal e traseira (modo 2) e da eficiência calculada com a fonte padrão extensa. No entanto antes de realizar qualquer medida, a uniformidade do ^{166m}Ho no solo dopado para a confecção da fonte padrão extensa foi testada.

5.1. Uniformidade do padrão

Os resultados do teste de uniformidade são apresentados na tabela 8. O maior valor de z-score entre as amostras é 1,5 (1º quarto e 2º quarto) de modo que foi verificado que o material radioativo está distribuído uniformemente no padrão.

Tabela 8. Verificação da uniformidade do padrão radioativo.

amostra	massa (g)	cps	cps/g
1º quarto	15,71 (7)	0,818 (32)	0,0521 (20)
2º quarto	15,10 (7)	0,855 (33)	0,0566 (22)
3º quarto	16,29 (7)	0,891 (32)	0,0547 (20)
4º quarto	15,90 (7)	0,847 (31)	0,0533 (20)

5.2. Espessura de 1cm

5.2.1 Resultados

Os dados do método aplicado e da eficiência obtida com a fonte extensa são apresentados na tabela 9. Também são apresentados os valores de z-score entre o modo 1 e a fonte extensa e entre o modo 2 e a fonte extensa.

Tabela 9. Eficiências experimentais da fonte extensa e via método proposto para amostra de solo (1 cm de espessura).

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80,52	6,82 (9)	6,78 (23)	0,30	6,79 (20)	0,34
88,0	6,58 (20)	6,76 (6)	-0,85	6,77 (26)	-0,92
184,4	5,44 (7)	5,40 (8)	-0,46	5,40 (8)	-0,45
215,9	4,89 (19)	5,10 (6)	1,40	5,10 (6)	1,58
259,7	4,11 (17)	4,03 (6)	2,02	4,03 (6)	2,02
280,5	3,94 (4)	3,82 (8)	2,69	3,82 (8)	2,69
300,7	3,48 (8)	3,49 (22)	-0,41	3,49 (22)	-0,10
365,8	3,05 (8)	2,90 (28)	1,86	2,93 (28)	1,99
411,0	2,60 (4)	2,49 (10)	-1,05	2,49 (10)	-1,04
451,5	2,37 (8)	2,42 (19)	-1,03	2,42 (19)	-0,81
464,8	2,28 (9)	2,37 (4)	-2,39	2,37 (4)	-2,53
529,8	2,11 (8)	1,96 (14)	-0,36	1,96 (14)	-0,35
571,0	2,01 (6)	1,95 (16)	-0,47	1,95 (16)	0,70
611,6	2,03 (25)	1,83 (5)	0,69	1,83 (5)	0,81
670,5	1,71 (6)	1,72 (13)	-0,15	1,72 (13)	-0,04
691,3	1,63 (8)	1,68 (20)	-0,66	1,68 (20)	-0,49
711,7	1,63 (19)	1,62 (4)	-0,16	1,62 (4)	0,19
752,3	1,57 (27)	1,53(7)	1,29	1,53 (7)	1,41
778,8	1,52 (4)	1,56 (11)	-1,01	1,56 (11)	-0,84
810,3	1,46 (22)	1,46 (4)	-1,28	1,46 (4)	-1,00
830,6	1,43 (4)	1,42 (6)	-0,41	1,42 (6)	0,06
875,7	1,35 (5)	1,34 (20)	-0,45	1,34 (20)	0,33
1173,2	1,09 (8)	1,12 (19)	-3,43	1,14 (22)	-6,49

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
1241,5	1,09 (11)	1,01 (15)	0,13	1,01 (15)	0,71
1332,5	1,01 (7)	0,997 (17)	2,03	1,00 (20)	1,15
1427,2	0,938 (6)	0,914(15)	0,31	0,914 (15)	0,37

5.2.2. Ajustes e interpolações

Aqui foi testada uma função para ajuste da eficiência, visando a comparação dos parâmetros e dos valores interpolados.

A função a ser ajustada é composta pela soma de duas exponenciais e um terceiro termo que inclui a atenuação efetiva de fótons num detector de HPGe (Zevallos-Chávez et al, 2005). Tal função é apresentada na equação 26.

$$\varepsilon E = a \cdot e^{b \cdot E} + c \cdot e^{d \cdot E} \cdot e^{-\mu/\rho \cdot E} \quad 26$$

onde a , b , c , d e e são parâmetros de ajuste e μ/ρ é coeficiente de atenuação mássico. O coeficiente de atenuação tem dependência energética, e seu valor para o Ge foi obtido do sitio XCOM (Berger, 1998) e ajustado segundo a equação 27:

$$\mu/\rho E = a_1 \cdot E^{a_2} + a_3 \cdot E^{a_4} \quad 27$$

Os parâmetros ajustados são $a_1=0,05576$; $a_2=-0,4524$; $a_3=0,000253$ e $a_4=-3,129$.

Na figura 13 é apresentado um gráfico com todos os pontos e nas figuras 14, 15 e 16 são apresentados os ajustes da função nos dados obtidos pela fonte extensa, pelo método via modo 1 e pelo método via modo 2, respectivamente. Na figura 17 são apresentados os valores de *z-score* da comparação do método com a fonte padrão extensa. Os parâmetros dos ajustes dos dados obtidos com o método (modo 1 e modo 2) e com o padrão extenso são apresentados na tabela 10.

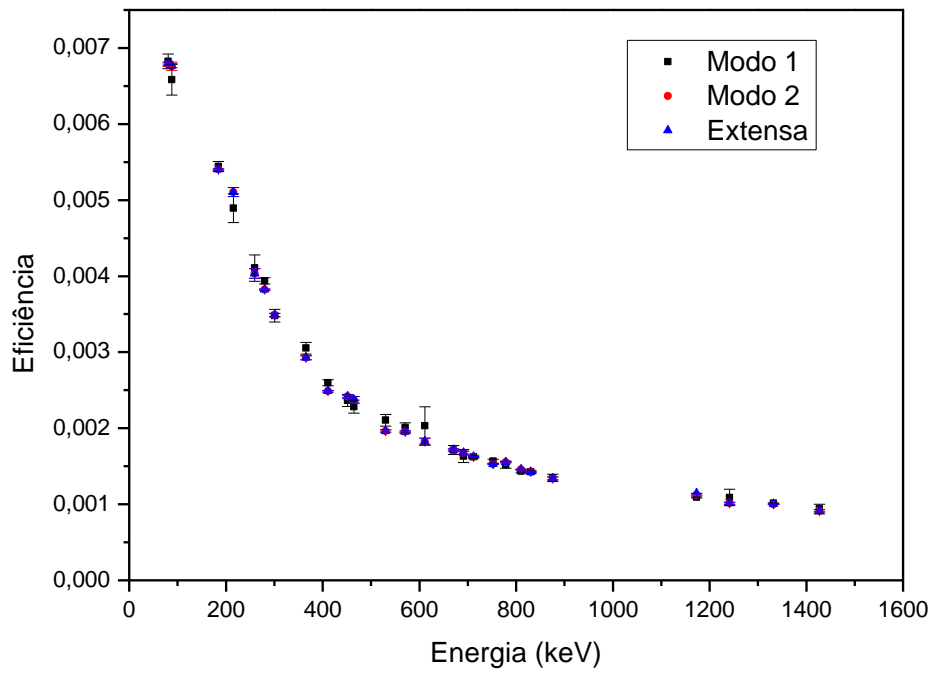


Figura 13. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto (1 cm).

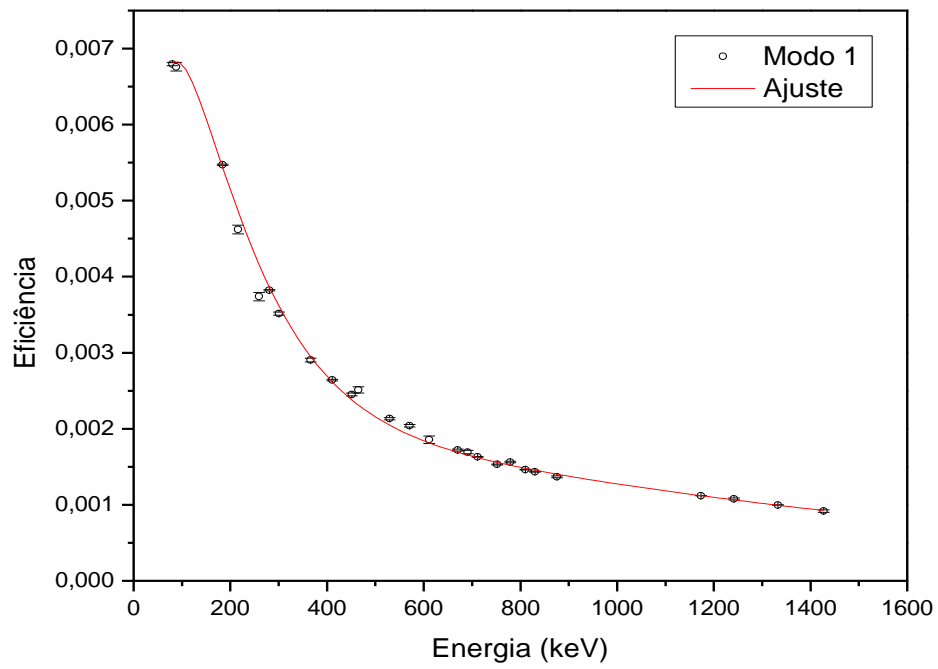


Figura 14. Dados da eficiência e ajuste da função via método – modo1 (1 cm).

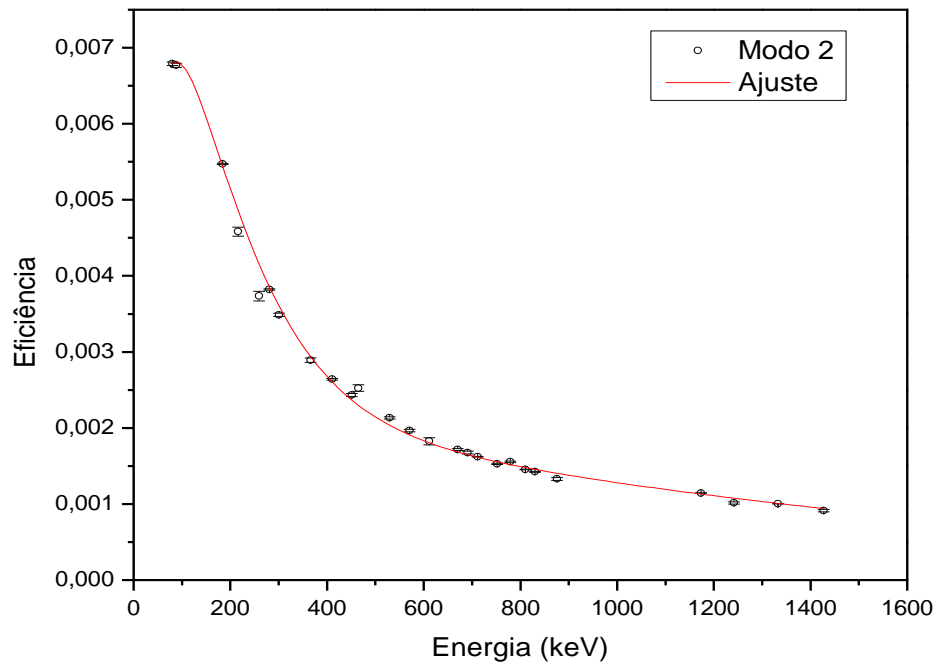


Figura 15. Dados da eficiência e ajuste da função via método – modo2 (1 cm).

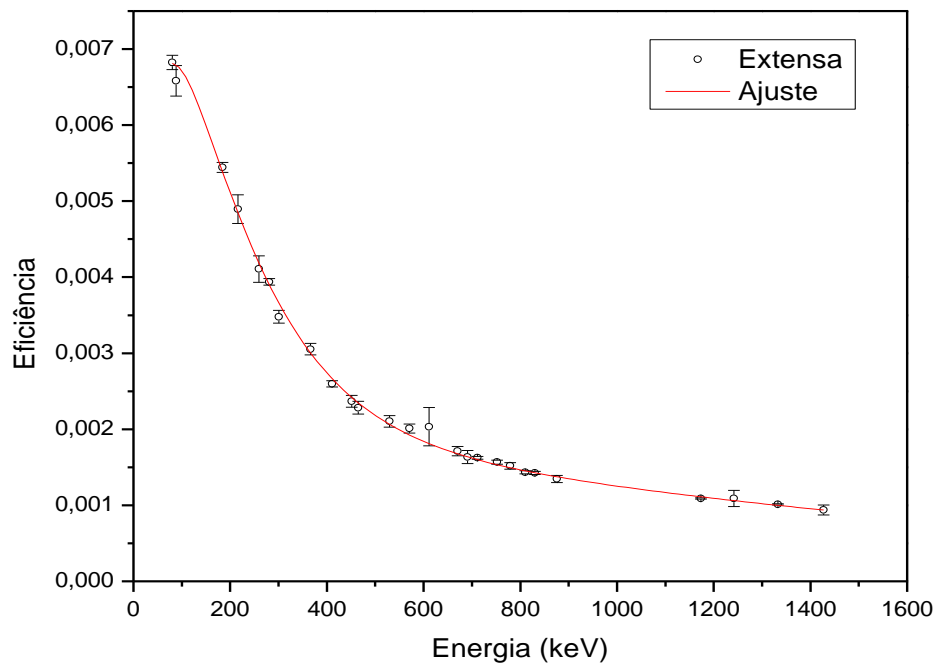


Figura 16. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa (1 cm).

Tabela10. Resultados dos ajustes: parâmetros obtidos com o modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso, para a amostra de solo com 1 cm de espessura.

Parâmetro	Modo 1	Modo 2	Padrão extenso
$a \text{ (keV)}^{-1}$	0,0046 (8)	0,0045 (8)	0,0032 (32)
b	-0,00087 (8)	-0,00085 (9)	-0,00069 (5)
c	0,038 (12)	0,039 (13)	0,022 (35)
$d \text{ (keV)}^{-1}$	-0,00761 (7)	-0,00764 (7)	-0,0062 (34)
$e \text{ (g/cm}^2\text{)}$	168,0 (35)	173 (36)	112 (18)
χ^2_{red}	18,6	20,4	2,96

Pode-se observar que os parâmetros a e b da eficiência da fonte padrão extensa são estatisticamente compatíveis dentro de um desvio padrão com os obtidos pelo método tanto pelo modo 1 como pelo 2. Os parâmetros c e d , responsável pela descrição da parte inicial da curva e o parâmetro e da atenuação apresentam compatibilidade em um intervalo de confiança pouco maior de 2 desvio padrão.

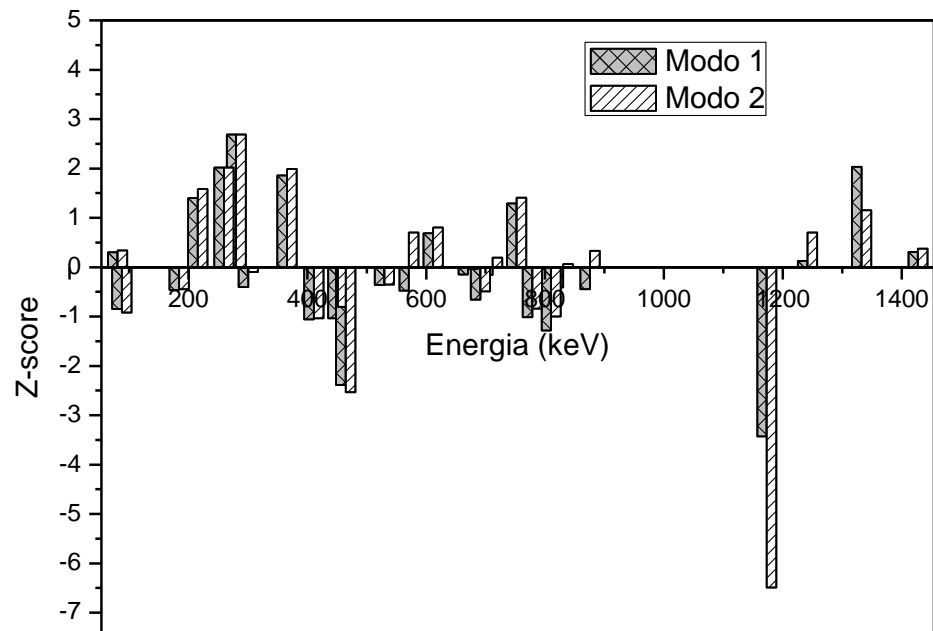


Figura 17. Comparação via z- score entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto (1 cm).

Ajustes de eficiência são usados na prática para fazer interpolações, portanto aqui serão comparados os valores das interpolações utilizando a fonte extensa e o método (modo 1 e modo 2). Na tabela 11 são apresentados esses valores juntamente com os z-score das eficiências interpoladas.

Tabela 11. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para a amostra de solo (1cm de espessura).

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80	6,84 (9)	6,82 (19)	0,29	6,79 (19)	0,62
90	6,80 (7)	6,84 (16)	-0,52	6,82 (15)	-0,25
100	6,71 (7)	6,79 (14)	-1,22	6,78 (13)	-1,02
150	6,00 (6)	6,08 (9)	-1,79	6,08 (10)	-1,83
200	5,12 (5)	5,14 (6)	-0,62	5,15 (7)	-0,66
300	3,71 (25)	3,62 (5)	3,54	3,61 (6)	3,81
400	2,79 (24)	2,69 (5)	4,09	2,68 (6)	4,59
500	2,22 (19)	2,16 (4)	3,03	2,14 (4)	3,65
750	1,54 (10)	1,56 (23)	-2,41	1,56 (23)	-2,07
1000	1,25 (8)	1,27 (16)	-3,73	1,28 (17)	-4049
1250	1,05 (5)	1,06 (12)	-0,54	1,07 (14)	-2,84
1400	0,960 (8)	0,944 (16)	1,93	0,980 (19)	0,04

5.2 Espessura de 3 cm

Para espessura de 3 cm foi aplicado o método com os dois modos e comparado com as medidas de fonte extensa. Os resultados são apresentados nas figuras 18, 19, 20, 21 e 22 e nas tabelas 12 e 13.

Tabela 12. Eficiências experimentais da fonte extensa e via método proposto da amostra solo (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80,6	5,53 (9)	5,38 (17)	1,62	5,37 (23)	1,70
88,0	5,58 (20)	5,40 (24)	0,86	5,41 (24)	0,82
184,4	4,55 (34)	4,48 (7)	1,83	4,48 (8)	1,83
215,9	4,09 (21)	4,05 (4)	0,17	4,05 (5)	0,18
259,7	3,65 (27)	3,44 (6)	0,76	3,44 (7)	0,73
280,5	3,37 (33)	3,19 (7)	5,58	3,19 (8)	5,54
300,7	3,05 (10)	2,99 (19)	0,56	2,99 (25)	0,59
365,8	2,50 (8)	2,51 (25)	-0,21	2,51 (32)	-0,11
451,5	2,17 (4)	2,01 (18)	3,61	2,02 (23)	3,28
464,8	2,11 (10)	2,01 (4)	1,00	2,01 (6)	0,95
529,8	1,80 (7)	1,79 (12)	0,14	1,79 (14)	0,14
571,0	1,72 (6)	1,71 (15)	0,23	1,70 (17)	0,36
594,3	1,62 (12)	1,58 (8)	0,25	1,59 (10)	0,18
611,6	1,48 (26)	1,53 (4)	-0,21	1,52 (5)	-0,15
670,5	1,52 (7)	1,43 (10)	1,34	1,43 (12)	1,36
691,3	1,51 (8)	1,45 (23)	0,67	1,43 (27)	0,90
711,7	1,41 (22)	1,38 (4)	1,54	1,38 (4)	1,54
752,3	1,35 (24)	1,31 (6)	1,77	1,31 (7)	1,76
778,8	1,35 (4)	1,31 (10)	0,77	1,31 (12)	0,78
810,3	1,28 (22)	1,24 (4)	1,80	1,24 (4)	1,80
830,6	1,25 (24)	1,21 (5)	1,82	1,21 (6)	1,81
875,7	1,20 (5)	1,10 (21)	2,02	1,09 (25)	2,06
1173,2	0,983 (9)	0,988 (20)	-0,51	0,988 (20)	-0,50
1241,5	0,92 (8)	0,876 (13)	0,56	0,875 (16)	0,56
1332,5	0,89 (8)	0,887 (18)	0,87	0,887 (18)	0,90
1427,2	0,93 (10)	0,820 (15)	1,05	0,778 (18)	1,47

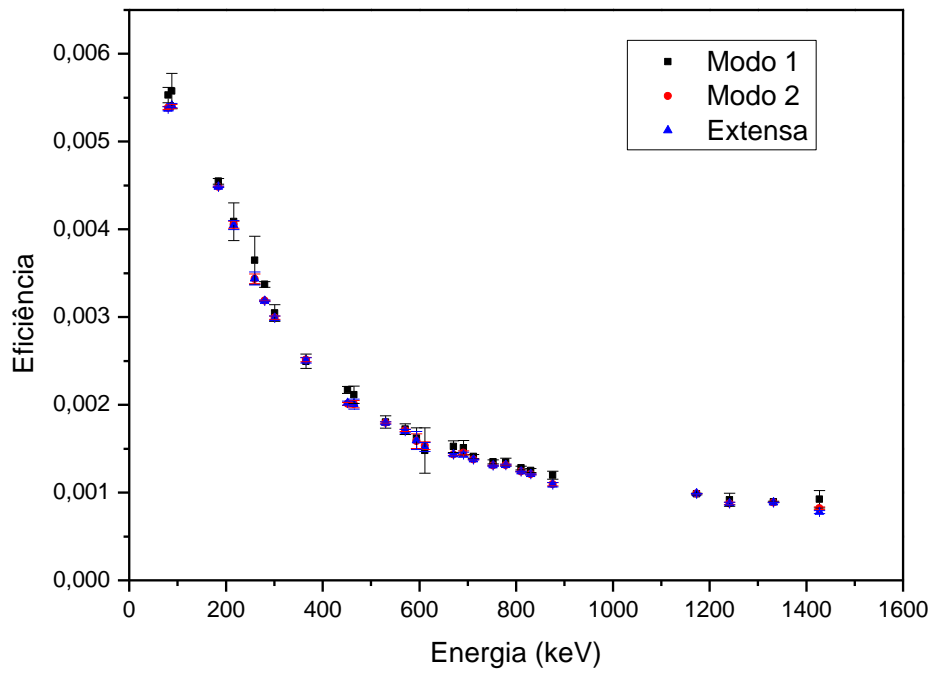


Figura 18. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto (3 cm).

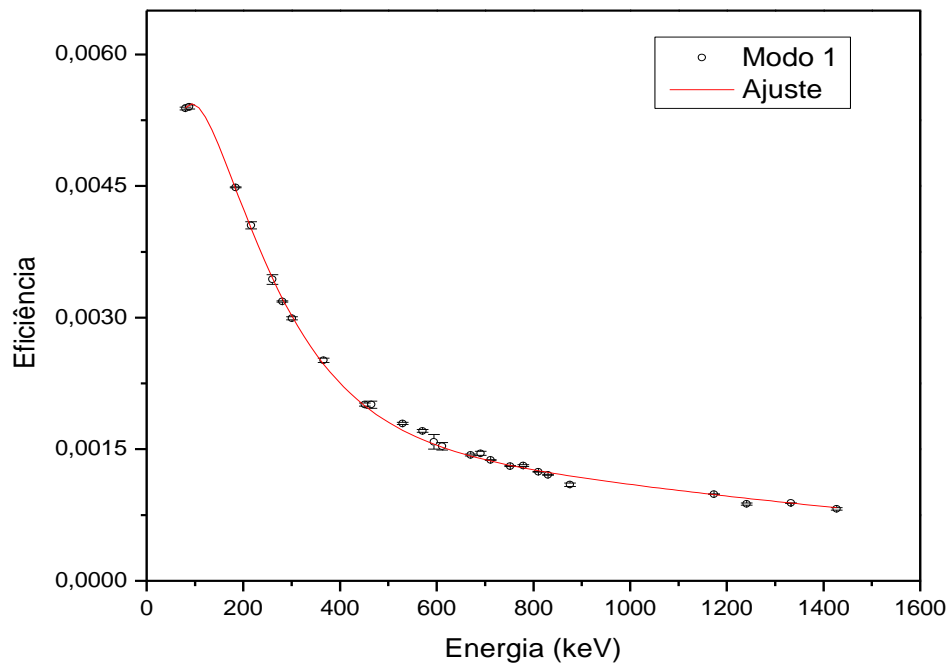


Figura 19. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo1 (3 cm).

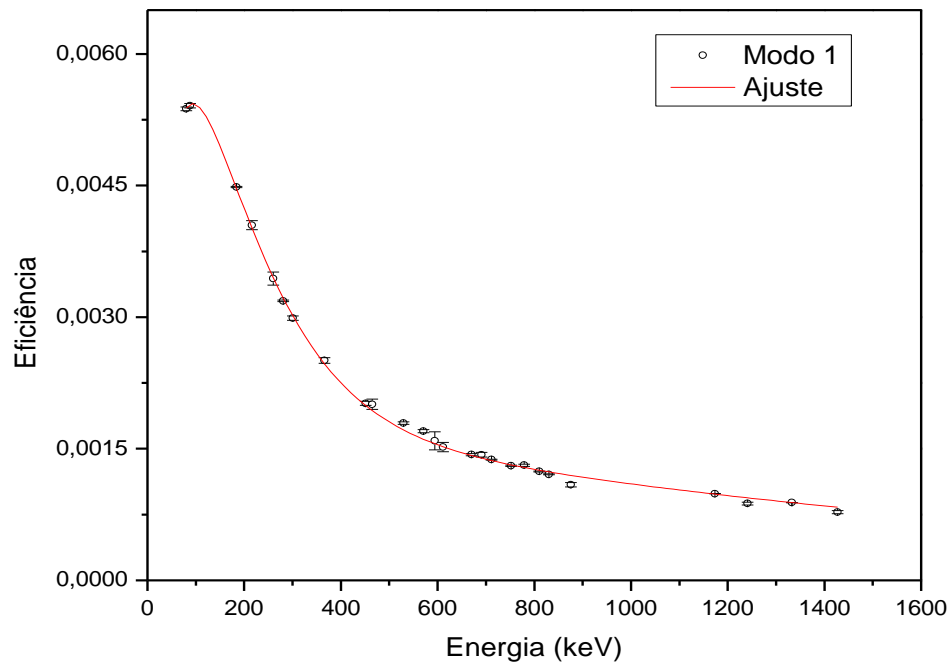


Figura 20. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2 (3 cm).

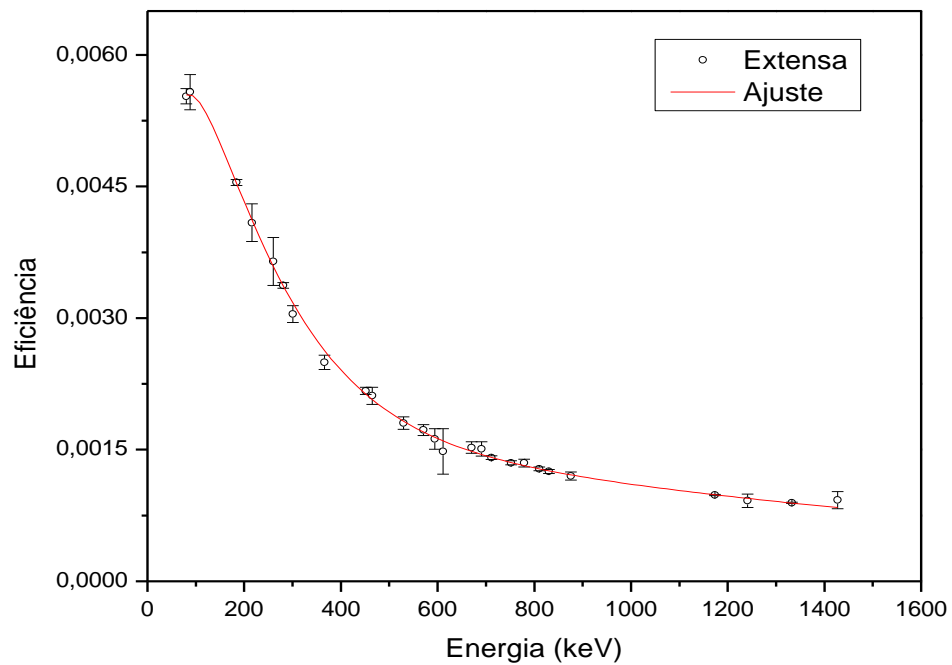


Figura 21. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa (3 cm).

Tabela 13. Resultados dos ajustes: parâmetros obtidos com o modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso para a amostra de solo de 3 cm de espessura.

Parâmetro	Modo 1	Modo 2	Padrão extenso
$a \text{ (keV)}^{-1}$	0,00366 (7)	0,0325 (14)	0,00301 (30)
b	-0,000776 (10)	-0,00738 (9)	-0,000703 (5)
c	0,0322 (11)	0,00367 (9)	0,0206 (32)
$d \text{ (keV)}^{-1}$	-0,00736 (8)	-0,000777 (11)	-0,00630 (34)
$e \text{ (g/cm}^2\text{)}$	179 (38)	180 (5)	132 (17)
χ^2_{red}	12,9	9,3	0,43

Aqui a compatibilidade dos parâmetros obtidos pelo método com relação à fonte padrão extensa piorou só sendo atingida com pouco mais de dois desvios padrão. Também é possível notar uma diminuição dos valores de χ^2 , que pode ser explicado pelo ligeiro aumento da incerteza percentual nos pontos com energia superior a 850 keV.

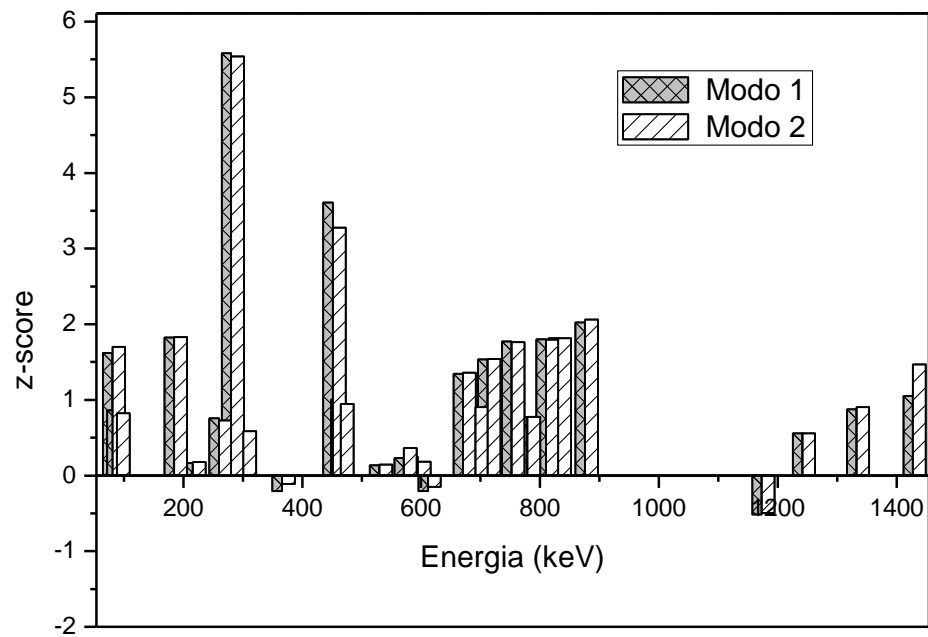


Figura 22. Comparação entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto (3 cm).

Na tabela 14 são apresentados os valores das interpolações utilizando a fonte extensa e o método (modo 1 e modo 2) juntamente com os z-score das eficiências interpoladas.

Tabela 14. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para amostra solo (3cm de espessura).

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80	5,54 (8)	5,39 (14)	1,87	5,38 (17)	1,93
90	5,55 (7)	5,43 (11)	1,65	5,43 (14)	1,70
100	5,51 (6)	5,43 (10)	1,40	5,42 (12)	1,44
150	5,00 (38)	4,95 (8)	1,15	4,95 (10)	1,15
200	4,30 (27)	4,24 (5)	2,21	4,24 (7)	2,19
300	3,05 (23)	3,02 (6)	1,19	3,02 (7)	1,22
400	2,30 (24)	2,25 (6)	2,02	2,25 (7)	2,06
500	1,82 (19)	1,81 (4)	0,89	1,81 (5)	0,94
750	1,33 (10)	1,32 (19)	1,13	1,32 (22)	1,16
1000	1,11 (8)	1,10 (15)	0,90	1,10 (16)	0,88
1250	0,940 (6)	9,35 (13)	0,69	0,936 (13)	0,67
1400	0,855 (8)	8,48 (17)	0,79	0,848 (18)	0,78

É possível observar, pela predominância dos z-score positivos tanto nos pontos experimentais como interpolados que a eficiência obtida pelo método está subestimada em relação à eficiência obtida com o padrão extenso, particularmente para as energias mais baixas.

5.3. Variação do número atômico

Como modo de validar o método em diferentes condições, nesta etapa o número atômico efetivo da amostra foi alterado, inicialmente diminuindo valor efetivo do Z da matriz adicionando grafite e depois aumentando-o adicionando limalha de ferro.

5.3.1. Matriz de solo com grafite

Para a espessura de 3 cm com matriz solo+grafite foi aplicado o método com os dois modos e comparados com as medidas de fonte extensa. Os resultados são apresentados nas figuras 23, 24, 25, 26 e 27 e nas tabelas 15, 16 e 17.

Tabela 15. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo+grafite (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80,6	10,84 (23)	10,62 (30)	0,97	10,58 (30)	1,11
184,4	8,56 (10)	8,40 (12)	1,66	8,38 (12)	1,85
190,9	8,29 (16)	7,53 (39)	0,47	7,42 (4)	0,54
215,9	5,48 (38)	7,24 (6)	-4,57	7,24 (6)	-4,59
259,7	5,56 (6)	6,01 (5)	-0,70	6,05 (7)	-0,75
280,5	5,87 (9)	5,68 (11)	2,16	5,87 (11)	0,07
300,7	5,34 (21)	5,36 (25)	-0,09	5,41 (24)	-0,29
365,8	4,74 (24)	4,43 (31)	1,27	4,42 (31)	1,32
451,5	3,78 (18)	3,77 (27)	0,06	3,82 (26)	-0,21
464,9	3,63 (38)	3,76 (5)	-0,33	3,84 (5)	-0,54
529,9	3,16 (15)	3,22 (20)	-0,46	3,22 (20)	-0,44
571,0	3,19 (15)	3,03 (20)	1,07	3,02 (20)	1,10
594,3	1,40 (7)	2,65 (11)	-1,72	2,62 (11)	-1,68
611,6	3,84 (7)	2,77 (6)	1,50	2,81 (7)	1,44
670,5	2,61 (14)	260 (17)	0,05	2,60 (17)	0,09
691,3	2,70 (30)	2,60 (25)	0,35	2,64 (34)	0,21
711,7	2,48 (5)	2,46 (6)	0,43	2,46 (6)	0,42

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
752,3	2,29 (7)	2,33 (9)	-0,56	2,36 (9)	-0,99
778,8	2,32 (15)	2,35 (14)	-0,21	2,36 (15)	-0,29
810,3	2,20 (5)	2,21 (6)	-0,23	2,21 (6)	-0,21
830,6	2,18 (7)	2,15 (8)	0,58	2,14 (8)	0,62
875,7	1,57 (39)	2,16 (28)	-1,51	2,15 (27)	-1,48
950,8	1,89 (15)	1,92 (28)	-0,20	1,91 (28)	-0,16
1241,5	1,33 (18)	1,54 (18)	-1,15	1,54 (18)	-1,15
1400,7	1,60 (14)	1,28 (18)	2,23	1,27 (18)	2,27
1427,2	1,63 (20)	1,34 (22)	1,40	1,34 (21)	1,44

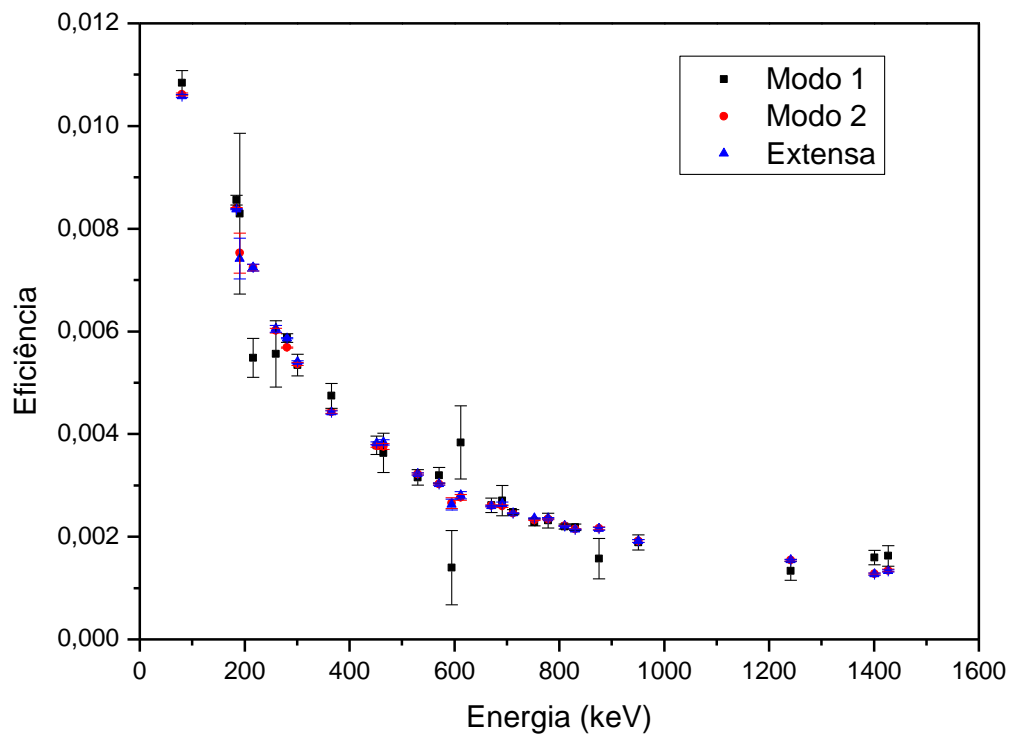


Figura 23. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto (3cm).

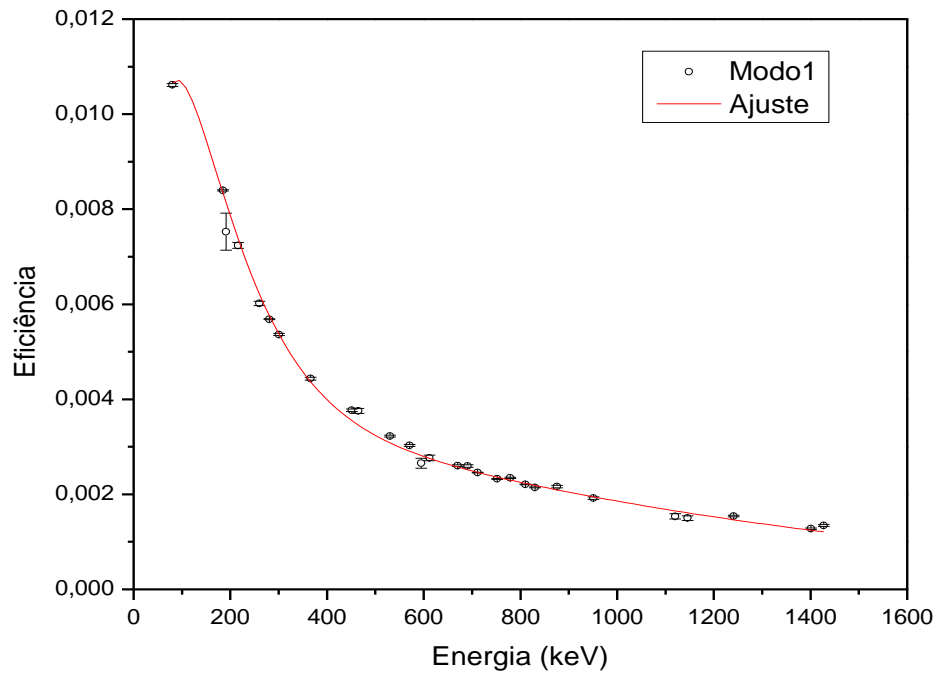


Figura 24. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo1 (3cm).

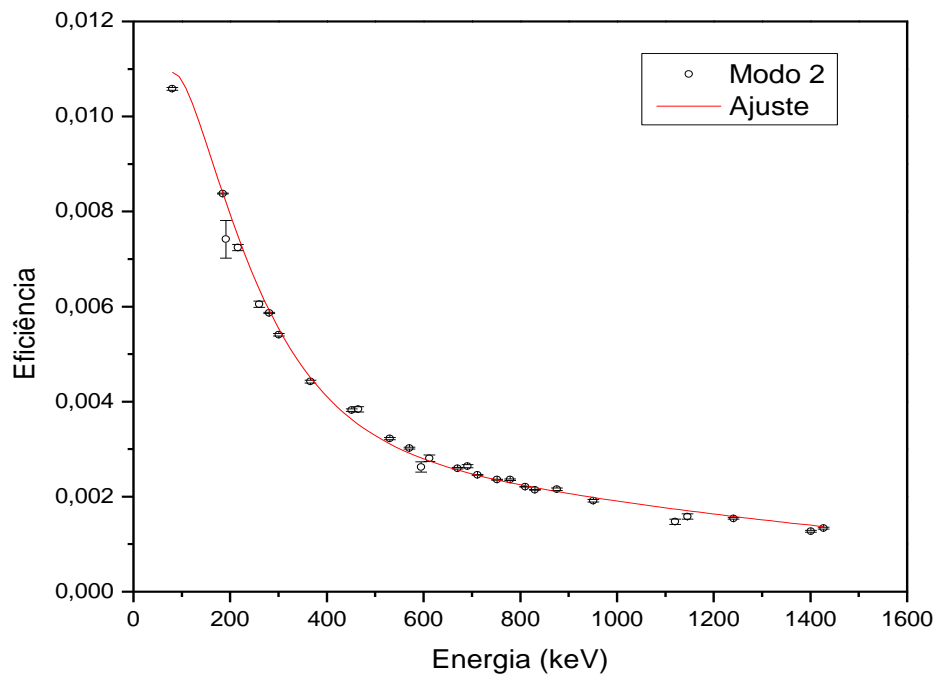


Figura 25. Dados da eficiência e ajuste da função via método proposto – modo2 (3cm).

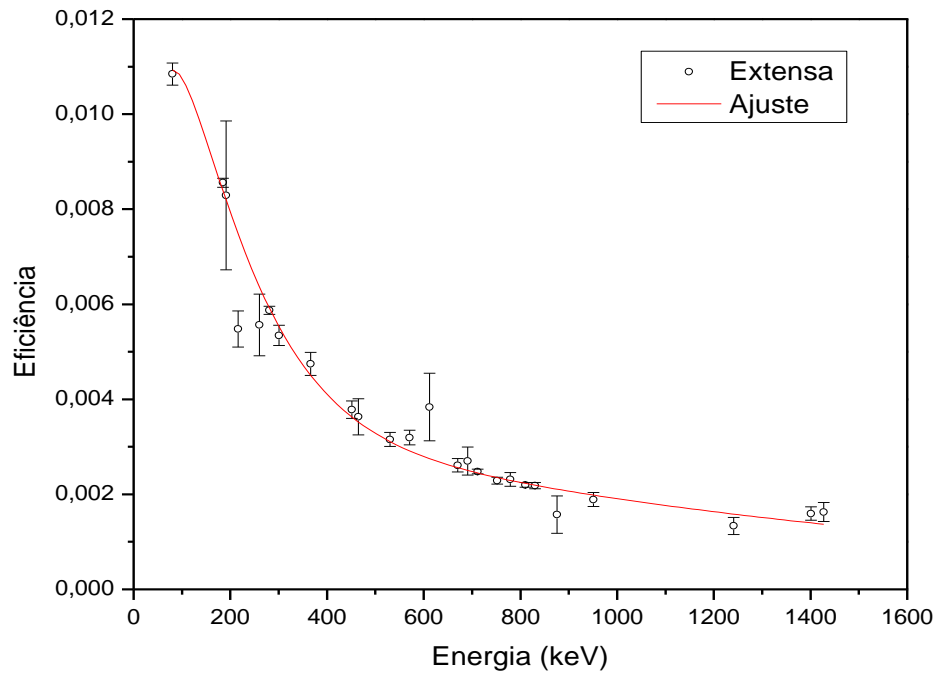


Figura 26. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa (3 cm).

Tabela 16. Resultados dos ajustes: parâmetros obtidos com o modo 1, modo 2(método proposto) e com o padrão extenso para a matriz solo + grafite de 3 cm de espessura.

Parâmetro	Modo 1	Modo 2	Padrão extenso
$a \text{ (keV)}^{-1}$	0,090 (35)	0,00839 (20)	0,052 (14)
b	-0,00904 (9)	-0,001083 (17)	-0,0076 (7)
c	0,00993 (23)	0,0639 (25)	0,0066 (12)
$d \text{ (keV)}^{-1}$	-0,00117 (16)	-0,00815 (9)	-0,00088 (14)
$e \text{ (g/cm}^2\text{)}$	208 (4)	176 (4)	149 (30)
χ^2_{red}	19,3	13,0	2,65

Os parâmetros obtidos são compatíveis com pouco mais de um desvio padrão (exceção ao d que tem menor desvio padrão porcentual o que implica em compatibilidade estatística somente para 2,25 desvios padrão)

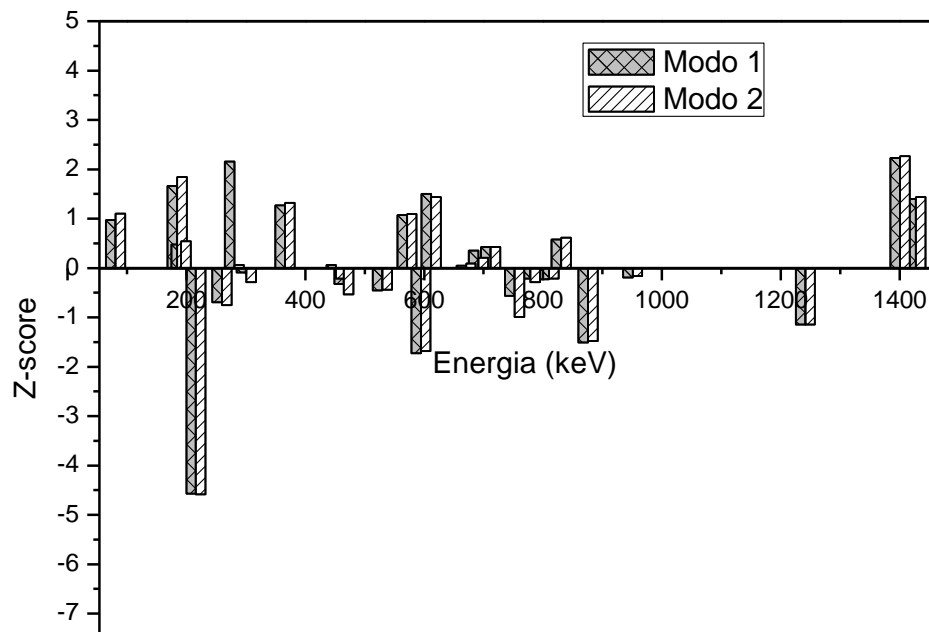


Figura 27. Comparação via z-score entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto -matriz solo+grafite (3 cm).

Tabela17. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método proposto, junto com os valores de z-score para matriz solo+grafite (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80	10,90 (23)	10,70 (30)	1,16	10,6 (30)	1,34
90	10,90 (19)	10,70 (24)	0,86	10,60 (24)	1,31
100	10,80 (16)	10,70 (21)	0,53	10,60 (21)	1,21
150	9,46 (12)	9,46 (15)	-0,010	9,38 (15)	0,63

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
200	7,94 (8)	7,86 (10)	0,97	7,89 (10)	0,60
300	5,54 (7)	5,38 (9)	2,29	5,51 (9)	0,36
400	4,10 (7)	3,99 (9)	1,60	4,11 (9)	-0,04
500	3,28 (5)	3,24 (7)	0,80	3,31 (7)	-0,44
750	2,36 (26)	2,37 (33)	-0,38	2,37 (33)	-0,31
1000	1,91 (4)	1,86 (5)	1,17	1,86 (5)	1,16
1250	1,57 (8)	1,45 (9)	1,57	1,47 (9)	1,35
1400	1,40 (9)	1,25 (10)	1,63	1,27 (10)	1,35

5.3.2 Matriz de solo com limalha de ferro.

Para espessura de 3 cm com matriz solo+limalha de ferro foi aplicado o método com dois modos e comparados com as medidas de fonte extensa. Os resultados são apresentados nas figuras 28, 29, 30, 31 e 32 e nas tabelas 18, 19 e 20.

Tabela 18. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo + ferro (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80,6	4,96 (11)	4,45 (16)	4,61	4,45 (16)	4,64
184,4	4,78 (5)	4,44 (7)	6,24	4,43 (6)	6,45
215,9	4,74 (34)	3,86 (5)	2,57	3,85 (5)	2,61
259,7	3,81 (38)	3,30 (6)	1,32	3,29 (6)	1,34
280,5	3,38 (5)	3,19 (7)	3,67	3,20 (7)	3,64
300,7	3,06 (13)	2,94 (20)	0,94	2,93 (20)	1,01
365,8	2,73 (18)	2,48(27)	1,41	2,47 (27)	1,47
451,5	2,03 (10)	2,08 (19)	-,056	2,08 (19)	-0,47

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	z -score	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	z -score
571,0	1,68 (9)	1,67 (13)	0,11	1,67 (13)	0,12
594,3	1,38 (28)	1,51 (5)	-0,44	1,50 (5)	-0,41
611,6	1,45 (5)	1,53 (36)	-0,16	1,52 (36)	-0,16
670,5	1,48 (8)	1,46 (10)	0,29	1,46 (10)	0,30
691,3	1,75 (24)	1,46 (15)	1,18	1,46 (15)	1,18
711,7	1,43 (29)	1,38 (4)	1,70	1,38 (4)	1,55
752,3	1,37 (5)	1,306 (6)	1,48	1,30 (6)	1,61
810,3	1,28 (30)	1,25 (4)	1,52	1,25 (4)	1,58
830,6	1,22 (4)	1,21 (5)	0,05	1,21 (5)	0,19
1241,5	0,71 (11)	0,91 (17)	-1,78	0,91 (16)	-1,76
1427,2	0,81 (11)	0,795 (16)	0,09	0,79 (16)	0,12

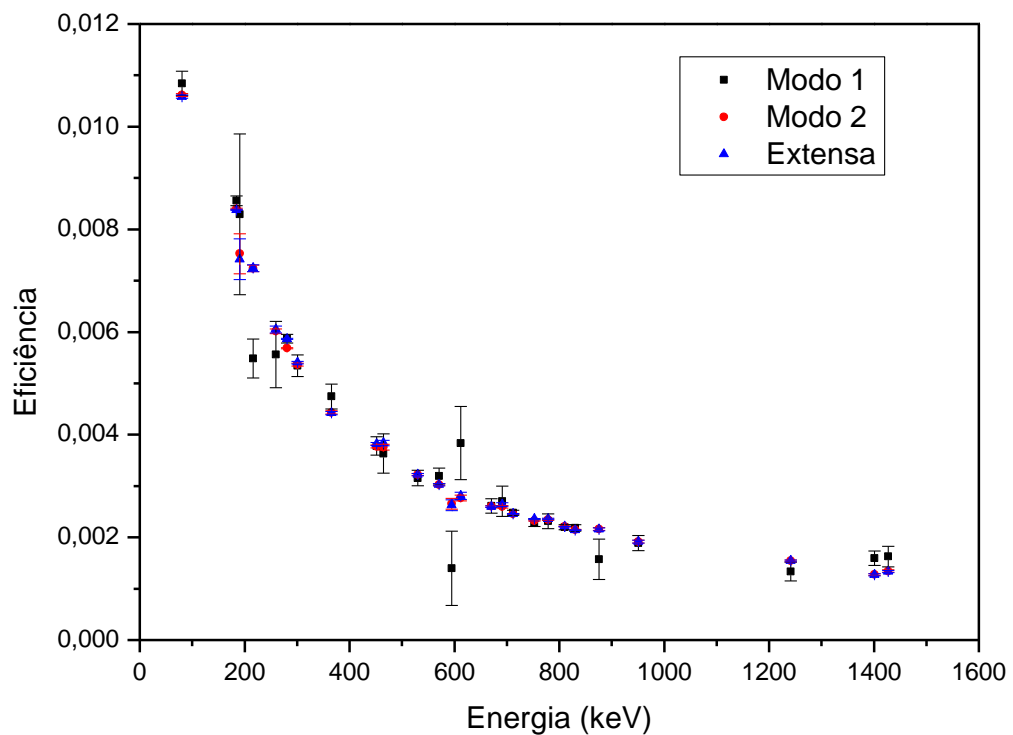


Figura 28. Dados da eficiência com a fonte padrão extensa e pelo método proposto (3cm).

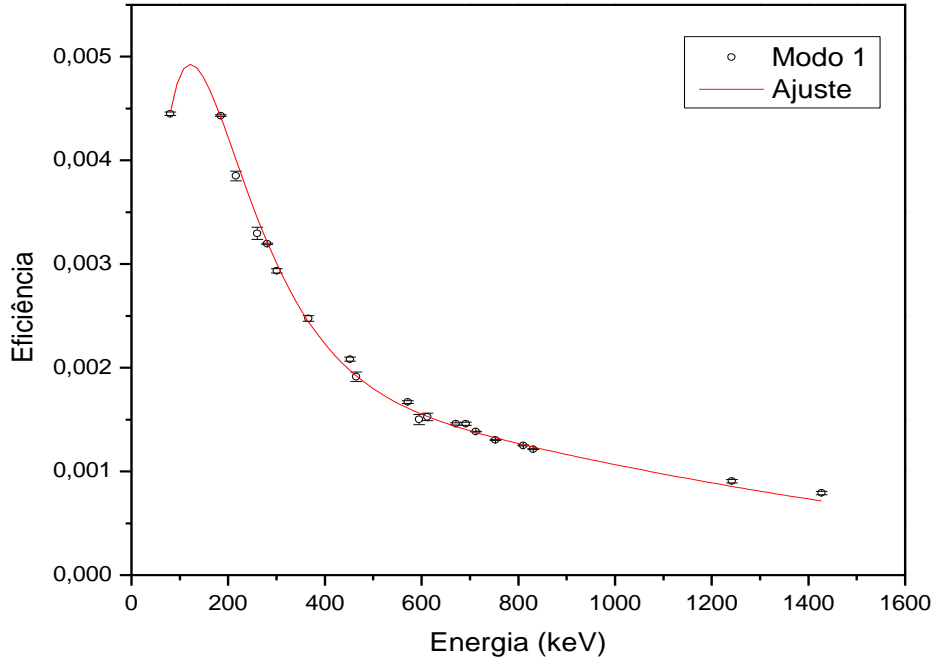


Figura 29. Dados da eficiência e ajuste da função via método – modo1 (3cm).

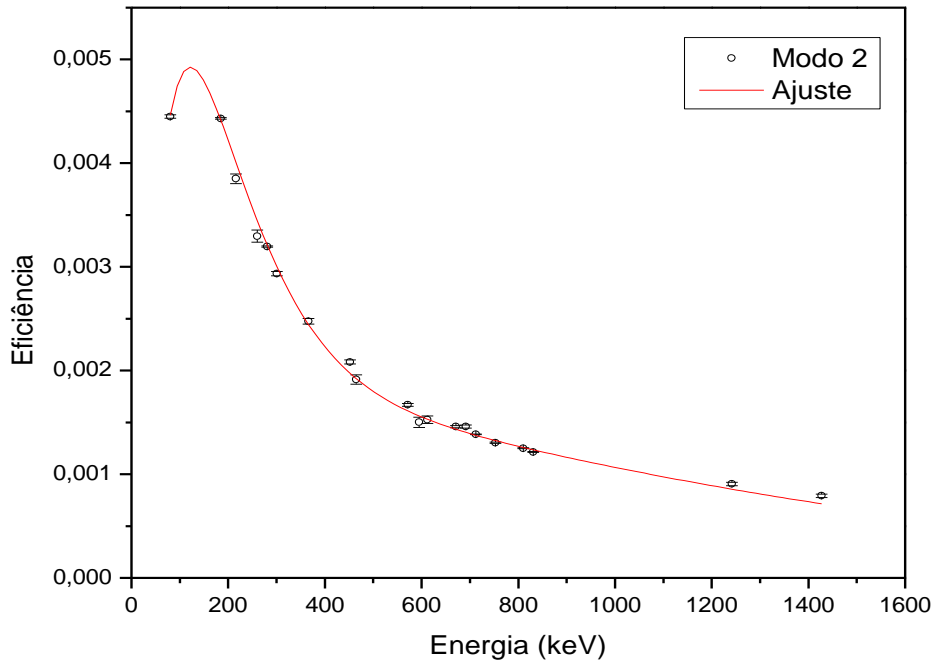


Figura 30. Dados da eficiência e ajuste da função via método – modo2 (3cm).

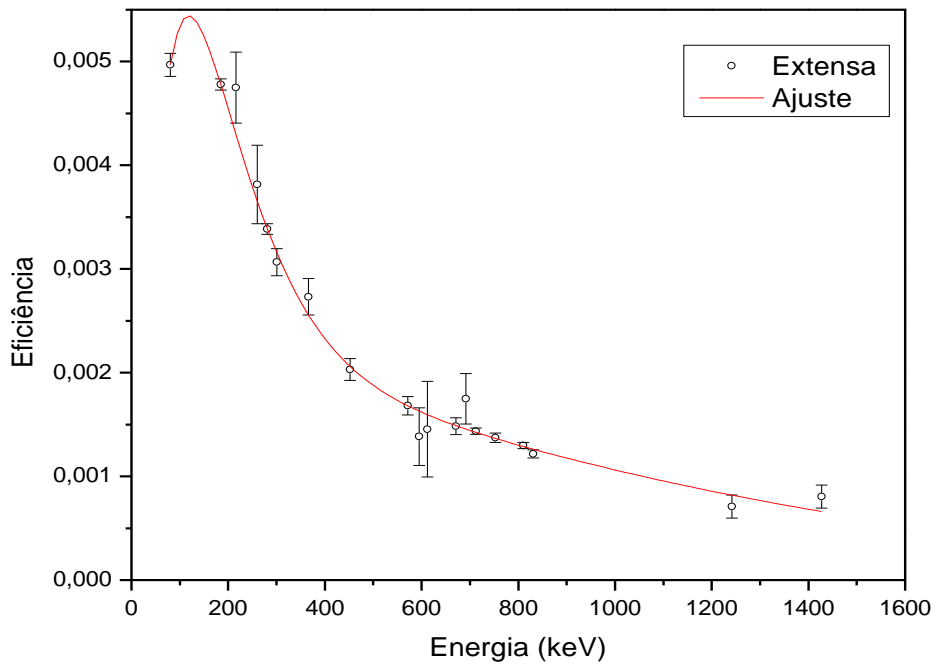


Figura 31. Dados da eficiência e ajuste da função com a fonte padrão extensa (3 cm).

Tabela 19. Resultados dos ajustes: parâmetros obtidos com o modo 1, modo 2 (método proposto) e com o padrão extenso para a matriz solo + ferro 3cm de espessura.

Parâmetro	Modo 1	Modo 2	Padrão extenso
$a \text{ (keV)}^{-1}$	0,00774 (24)	0,0941 (4)	0,00956 (21)
b	-0,00119 (26)	-0,00900 (10)	-0,00138 (18)
c	0,0941 (4)	0,00774 (24)	0,121 (4)
$d \text{ (keV)}^{-1}$	-0,0090 (10)	-0,001198 (26)	-0,00967 (7)
$e \text{ (g/cm}^2\text{)}$	322,3 (5)	322,0 (5)	334 (34)
χ^2_{red}	12,4	12,4	0,71

Pode-se observar que todos os parâmetros do ajuste da função de eficiência nos dados obtidos com o padrão extenso são estatisticamente compatíveis com os dos parâmetros do ajuste dos dados via método proposto dentro de um desvio padrão.

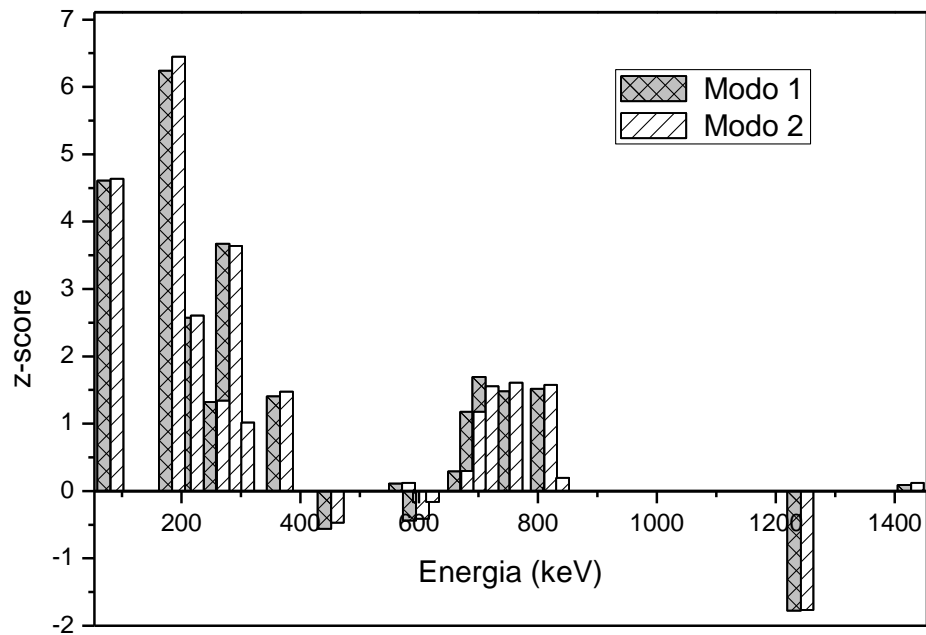


Figura 32. Comparação via z-score entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto -matriz solo +limalha de ferro (3 cm).

Tabela 20. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método, junto com os valores de z-score para matriz solo + ferro (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80	4,89 (8)	4,583 (14)	3,77	4,682 (14)	2,56
90	4,97 (7)	4,670 (12)	4,21	4,772 (12)	2,77
100	5,00 (7)	4,709 (11)	4,03	4,815 (11)	2,56

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
150	4,71 (8)	4,481 (10)	2,91	4,593 (10)	1,51
200	4,14 (5)	3,956 (7)	3,38	4,066 (7)	1,38
300	3,055 (39)	2,919 (6)	3,50	3,012 (6)	1,11
400	2,33 (5)	2,211 (7)	2,68	2,285 (7)	1,03
500	1,900 (36)	1,786 (6)	3,05	1,844 (5)	1,45
750	1,376 (16)	1,305 (21)	4,51	1,339 (21)	2,35
1000	1,092 (36)	1,071 (5)	0,58	1,094 (5)	-0,04
1250	0,87 (6)	0,885 (5)	-0,31	0,900 (9)	-0,55
1400	0,75 (8)	0,7842 (11)	-0,49	0,796 (11)	-0,65

Novamente é perceptível a predominância de valores positivos de *z-scores* nos pontos obtidos experimentalmente bem como os pontos obtidos por interpolação. Percebe-se ainda que esta predominância é mais presente para baixas energias.

5.4. Observações sobre o método

Três aspectos do método proposto e sua validação serão discutidos aqui: a influência da grade de pontos no método proposto, a influência no método proposto da

função de ajuste utilizada nos testes e o modo de estimativa de incertezas durante a aplicação do método proposto.

5.4.1. Sobre a grade de pontos.

O primeiro e mais importante diz respeito a uma limitação no modo de aplicação do método. O uso da grade de pontos com variação do raio não é o melhor modo de se ponderar a eficiência pois para raios maiores, e portanto volumes maiores da amostra, o mesmo número de pontos continua sendo medido. Deste modo, está se atribuindo diferentes pesos para regiões distintas. Mais precisamente, segundo essa grade quanto maior o raio, menor o peso do ponto por unidade de área e então, regiões onde a atenuação pode ser mais importante estão com menor representação na composição da eficiência obtida pelo método. Essa deficiência torna-se mais significativa para energias menores, que sofrem mais intensamente o efeito de atenuação, e também com o aumento da espessura da amostra. A grade ideal para obter as eficiências é uma grade formando uma malha quadriculada onde os pontos são igualmente espaçados entre si. A partir dos dados já obtidos, fez-se uma tentativa de considerar a diferença de peso inserindo uma correção no cálculo das eficiências médias, adicionando à ponderação $1/\sigma^2$ um termo proporcional à área dos anéis (r^2) dividido pelo número de pontos que o respectivo anel tem, segundo a equação:

$$\varepsilon E = \frac{\varepsilon_1 \sigma_1^2 + \frac{9\varepsilon_i}{2} \sigma_i^2 \cdot \frac{1^2}{8} + \frac{17\varepsilon_i}{10} \sigma_i^2 \cdot \frac{2^2-1}{8} + \frac{25\varepsilon_i}{18} \sigma_i^2 \cdot \frac{3^2-2^2}{8} + \frac{33\varepsilon_i}{26} \sigma_i^2 \cdot \frac{4^2-3^2}{8}}{1 \sigma_1^2 + \frac{91}{2} \sigma_i^2 \cdot \frac{1^2}{8} + \frac{171}{10} \sigma_i^2 \cdot \frac{2^2-1}{8} + \frac{251}{18} \sigma_i^2 \cdot \frac{3^2-2^2}{8} + \frac{331}{26} \sigma_i^2 \cdot \frac{4^2-3^2}{8}} \quad 28$$

Essa correção foi testada para a amostra de 3 cm de altura contendo a limalha de ferro, pois ela deve ser a mais sensível à correção. Na tabela 21 são apresentados os valores da eficiência obtida com a fonte padrão extensa e com o método proposto e os valores de *z-score* entre eles. Na tabela 22 é apresentada uma comparação entre os valores de *z-score* obtidos sem a ponderação e com a ponderação.

Tabela 21. Valores das eficiências experimentais obtidas com a fonte extensa e via método proposto para matriz solo + ferro considerando o fator de correção (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Extensa ($\times 10^{-3}$)	Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	z-score	Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	z-score
80,6	4,90 (8)	4,805 (20)	1,28	4,797 (20)	1,39
184,4	4,29 (7)	4,519 (12)	-3,49	4,512 (12)	-3,39
215,9	4,04 (23)	4,00 (5)	0,18	3,99 (5)	0,23
259,7	3,58 (23)	3,357 (33)	1,00	3,37 (8)	0,91
280,5	3,27 (4)	3,242 (9)	0,70	3,239 (8)	0,77
300,7	2,84 (13)	2,964 (28)	-0,99	2,991 (28)	-1,21
365,8	2,70 (17)	2,527 (36)	1,02	2,525 (36)	1,03
451,5	1,93 (11)	2,112 (26)	-1,75	2,105 (26)	-1,68
571,0	1,68 (8)	1,707 (17)	-0,35	1,700 (17)	-0,26
594,3	1,42 (24)	1,60 (9)	-0,67	1,59 (9)	-0,64
611,6	1,46 (5)	1,54 (4)	-0,18	1,54 (4)	-0,18
670,5	1,46 (6)	1,449 (12)	0,15	1,449 (12)	0,14
691,3	1,72 (22)	1,484 (31)	1,06	1,476 (31)	1,09
711,7	1,450 (29)	1,423 (5)	0,93	1,422 (5)	0,96
752,3	1,379 (33)	1,327 (6)	1,56	1,316 (6)	1,88
810,3	1,302 (29)	1,285 (5)	0,55	1,280 (5)	0,72
830,6	1,25 (4)	1,274 (8)	-0,58	1,268 (8)	-0,42
1120,78	1,6 (8)	1,214 (30)	0,58	---	-
1241,5	0,72 (12)	0,936 (17)	-1,80	0,937 (20)	-1,80
1427,2	0,81 (11)	0,810 (21)	0,03	0,804 (20)	0,09

Para permitir melhor comparação com os dados sem a correção (figura 32), são apresentados na figura 33 os *z-scores* em função da energia.. Nela é possível perceber a diminuição da tendência de valores de *z-score* positivos a baixas energias.

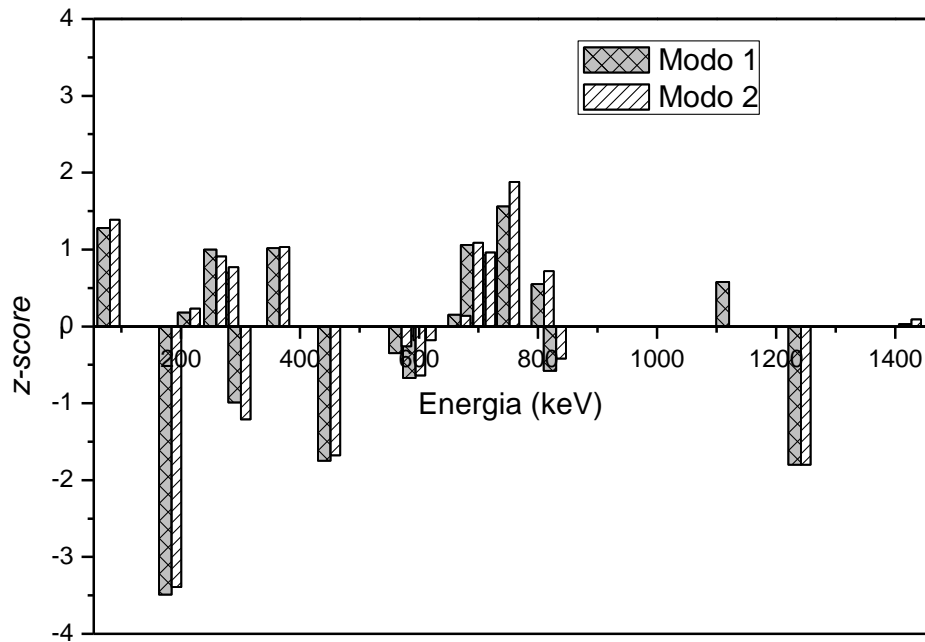


Figura 33. Comparação via *z-score* entre as eficiências obtidas com o padrão e com o método proposto -matriz solo +limalha de ferro utilizando a correção(3 cm).

Tabela 22. Eficiências interpoladas para a fonte extensa e pelo método, junto com os valores de *z-score* para matriz solo + ferro considerando o fator de correção (3 cm de espessura).

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
80	4,89 (8)	4,811 (20)	1,03	4,802 (20)	1,15
90	4,97 (7)	4,965 (17)	0,05	4,954 (17)	0,21
100	5,00 (7)	5,054 (16)	-0,84	5,042 (16)	-0,67

Energia (keV)	Eficiência Extensa ($\times 10^{-3}$)	Eficiência Modo 1 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>	Eficiência Modo 2 ($\times 10^{-3}$)	<i>z-score</i>
150	4,71 (8)	4,890 (14)	-2,37	4,880 (14)	-2,24
200	4,14 (5)	4,280 (10)	-2,71	2,277 (10)	-2,65
300	3,055 (39)	3,045 (8)	0,28	3,050 (8)	0,13
400	2,33 (5)	2,251 (9)	1,87	2,256 (9)	1,75
500	1,900 (36)	1,814 (7)	2,32	1,816 (7)	2,27
750	1,376 (16)	1,360 (29)	0,96	1,354 (29)	1,31
1000	1,092 (36)	1,115 (6)	-0,64	1,107 (7)	-0,43
1250	0,87 (6)	0,896 (11)	-0,51	0,891 (11)	-0,40
1400	0,75 (8)	0,781 (13)	-0,42	0,774 (13)	-0,33

Tabela 23. Comparação dos valores de z-score entre os valores obtidos sem a ponderação e com a ponderação para matriz solo + ferro (3 cm de espessura).

Energia (keV)	<i>z-score</i> do modo 1		<i>z-score</i> do modo 2	
	Sem ponderação	Com ponderação	Sem ponderação	Com ponderação
80	3,77	2,56	2,56	1,15
90	4,21	2,77	2,77	0,21
100	4,03	2,56	2,56	-0,67
150	2,91	1,51	1,51	-2,24
200	3,38	1,38	1,38	-2,65
300	3,50	1,11	1,11	0,13
400	2,68	1,03	1,03	1,75

Energia (keV)	<i>z-score</i> do modo 1		<i>z-score</i> do modo 2	
	Sem ponderação	Com ponderação	Sem ponderação	Com ponderação
500	3,05	1,45	1,45	2,27
750	4,51	2,35	2,35	1,31
1000	0,58	-0,04	-0,04	-0,43
1250	-0,31	-0,55	-0,55	-0,40
1400	-0,49	-0,65	-0,65	-0,33

A comparação entre os *z-score* permite perceber que os resultados obtidos com a ponderação são valores mais próximos aos obtidos com o padrão extenso, indicando que esta correção deve ser adotada e que futuros trabalho devem utilizar geometria retangular para a grade de pontos de medida.

5.4.2. Sobre a função de eficiência.

A função utilizada para o ajuste dos dados de eficiência é composta pela soma de dois termos exponenciais, multiplicada por um termo de atenuação. Este termo de atenuação contém o coeficiente de atenuação mássico do germânio como função da energia no intuito de considerar a absorção do fóton na camada morta do detector. No entanto, o que se observa na prática é que o parâmetro da exponencial de atenuação (anteriormente referido como e) obtido pelo ajuste não tem relação direta com a camada morta de germânio de modo que esse termo acaba levando em consideração outras atenuações como o copo de alumínio ou berílio do detector, o porta - amostras e a camada de ar entre a fonte e o detector. Ao utilizar esta função para o teste do método é provável que a atenuação do fóton na amostra tenha sido também levada em conta pelo parâmetro de atenuação. Isso pode ser percebido observando o parâmetro e obtido nos ajustes. Esse parâmetro tem

valores diferentes quando compara-se os obtidos do ajuste das eficiências medidas com padrão extenso com os obtidos pelo método proposto. Essa diferença indica que a função participa ativamente do método e portanto seu uso deve ser incorporado aos procedimentos para aplicação do método proposto.

5.4.3. Sobre as incertezas.

Consistentemente, os valores de chi-quadrado reduzido obtidos nos ajustes do método proposto estão altos, indicando provável subestimação nas incertezas. Essa subestimação pode ter mais de uma origem. Primeiramente, percebe-se que a determinação das incertezas associadas à eficiência para cada energia claramente está levando a resultados experimentais com incerteza subestimada; a melhor forma de estimar estas incertezas é algo que precisa ser visto com cuidado, talvez incluindo-se um fator multiplicativo aos desvios para atenuar a subestimação observada. Além disso, sabe-se que os métodos de linearização em ajustes não lineares com o método dos mínimos quadrados causam subestimação das incertezas (Donaldson, J.R & Schnabel, R. B., 1987); por outro lado, os ajustes dos dados da fonte extensa não apresentam essa subestimação, o que leva a crer que o problema de subestimação esteja sendo agravado pela pequena incerteza dos pontos experimentais.

Conclusões

No presente trabalho foi apresentado e testado um método alternativo para obtenção da eficiência de detecção com fontes de geometria extensa cujo objetivo é facilitar a determinação da atividade de radionuclídeos em áreas de estudo que as utilizam. O teste foi efetuado em diferentes condições: duas espessuras diferentes e três matrizes com os números atômicos efetivos diferentes. Os testes indicaram que o método é adequado para amostras de solo com espessura mais fina; já para fontes mais espessas, dois dos três resultados indicaram que a eficiência foi subestimada pelo método.

Dois modos de aplicação do método foram testados, o modo 1 e o modo 2 e não foi observada diferença significativa entre os dois modos.

O teste com o uso da matriz solo apresentou bons resultados para as fontes de 1 e 3 cm de espessura, porém é possível perceber que os resultados com a menor espessura são mais acurados, possivelmente devido ao afastamento da condição ideal para a aproximação feita da dedução do método de que a fonte é fina. Existe portanto um indicativo de que o método é mais eficiente para fontes mais finas.

Na espessura da matriz solo de 3 cm observa-se uma piora nos dados obtidos pelo método proposto, o que pode ser devido em especial à geometria de amostragem escolhida, que acaba por dar mais peso à região mais central. Testes usando uma ponderação com o quadrado da distância (como estimador da fração da massa total representada por cada ponto) mostraram uma melhora significativa nos resultados, indicando que uma geometria retangular, com pontos igualmente espaçados sobre a face da amostra, é mais adequada. Além disso, com a adoção de uma geometria retangular de medida, seria interessante fazer

um estudo visando diminuir o número de pontos de medida, de modo a tornar o método mais rápido sem perda significativa de acurácia.

O método também foi testado para espessura de 3 cm nas situações em que a matriz tem número atômico efetivo maior e menor que a matriz solo, e no entanto nenhuma diferença de desempenho do método foi observada.

Verificou-se que as incertezas obtidas nos cálculos utilizando-se o método proposto foram claramente subestimadas, e mostra-se necessário realizar estudos visando a correção dessa subestimação.

De forma geral, verificou-se que o método proposto independe do conhecimento prévio da composição química da amostra bem como da geometria de medidas e de parâmetros internos do detector, tornando a sua aplicação simples e confiável.

Referências bibliográficas

- ABASS, M.I. Analytical calculations of the solid angles subtended by a well-type detector at point and extended circular source, *Applied Radiation and Isotopes*, 64 (2006), 1048-1056.
- AGARWAL, C., CHAUDHURY, S., GOSWAMI, A., GATHIBANDHE, M, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 289 (2011) 773-780.
- BODE, P. De BRUIM, M. Korthoven, P. J. M. A method for the correction of self-absorption of low photons for use in routine INAA, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 64 (1981), 153-166.
- BERGER, M. J., HUBBELL, H., SELTZER, M., CHANG, J, COURSEY, J. S., SUKUMAR, R., ZUCKER, D. S., OLSEN, K., XCOM: Photon Cross Sections Database, disponível em <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>, acessado em 05/2011.
- ESTELA M.O. BERNARDES E.O. M., JOSÉ U. DELGADO, J. U., TAUHATA, L., DA SILVA, C. J., IWAHARA, A., ROBERTO POLEDNA, R., ANSELMO S. PASCHOA, A. S. “ ^{166m}Ho : a multi- γ standard for the calibration of Ge spectrometers” *Applied Radiation and Isotopes* 56 (2002) 157.
- CANBERRA INDUSTRIES, 2002a, Canberra Industries, Genie 2000 Operation Manual (2002).
- DEBERTIN, K and REN, J., “Measurement of the Activity of Radioactive Sample in Marinelli Beakers” *Nuclear instruments and Methods in Physics Research A*, Volume 278 (1989) 541-549.
- DONALDSON, J. R., SCHNABEL, R. B. “Computational Experience with Confidence Regions and Confidence Intervals for Nonlinear Least Squares” *Technometrics*, Volume 29 (1987) 67-82.

EWA, I. O. B., BODIZS, D., CZIFRUS, S. Z., and Molnar, ZS., “Monte Carlo Determination of Full Energy Peak Efficiency for HPGe Detector “ *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 55 (2001) 103-108.

FIGUEIREDO, A. M. G. ; TOCCHINI, M. ; DOS SANTOS, T. F.S. . Metals in playground soils of São Paulo city, Brazil. *Procedia Environmental Sciences*, v. 4, p. 303-309, 2011.

GUNNINK, R. and PRINDLE, A. L., “Nonconventional Methods for Accurately Calibrating Germanium Detectors,” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Volume 160, Number 2, (1992) 305-314.

GOUFFON, P., Manual do Programa IDeFix, IFUSP (1983).

HELMER, R. G., “Table of Radionucléides”, (1998). Disponível em http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Co-60_tables.pdf. Acesso em julho de 2010.

HUY, N. Q. and LUYEN T. V. *Applied Radiation and Isotopes* 61(2004).

HUY, N. Q. and LUYEN T. V., BODE, P., OVERWATER, R. M. W., DE GOEIJ, J. J. M., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 216 (1997) 5.

JACKMAN, K. R., *Master's Thesis*, The University of Texas at Austin, 2004.

JIANG, S.H., LIANG, J.H., CHOU, J.T., LIN, U.T., and YEH, W.W., “A Hybrid Method for Calculating Absolute Peak Efficiency of Germanium Detectors,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Volume 413 (1998) 281-292.

JUNEGUSA, J., KAWASAKI, K., MIHARA A., ITO M., YOSHIDA, M. *Applied Radiation and Isotopes*, 61 (2004), 1383-1390.

JOVANOVIC, S., DLABAC, A., MIHALJEVIC, N., VUKOTIC, P., *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218 (1997) 13.

KAHN, B. and KAMBOJ, S. Intrinsic efficiency calibration of a large Germanium detector, *Radioact. Radiochem.* 6(1994) p. 46-56.

KNOL, G., *Radiation Detection and Measurement*, 3rd Edition. New Jersey: John Wiley & Sons, 2000.

LÉPY, M. C., BRUN, P., COLLIN, C., PLAGNARD, J. Experimental validation of coincidence summing corrections computed by the ETNA software, *Appl. Radiat. Isot.*, 64 (2006), pp. 1340–1345

LOVELAND, W. D., MORRISSEY, D. J.; SEABORG, G. T. *Modern Nuclear Chemistry*, 1st edition, John Wiley & Sons, 2006.

MOENS, L., De DONDER, J., LIN, XI-LEI, DE CORTE, F., DE WISPELAERE, A., SMIONITS, A., and HOSTE, J., “Calculation of the Absolute Peak Efficiency of Gamma-ray Detectors for Different Counting Geometries,” *Nuclear instruments and methods*, Volume 187(1981) 451-472.

ORESEGUN, M. O., DECKER, K. M., SANDERSON, C.G. Determination of self-absorption corrections by computation in routine gamma-ray spectrometry for typical environmental sample, *Radioact Radiochem*, 4 (1993), 38-45.

OWENS, A. A comparison of empirical and semi empirical efficiency calculations for Ge detectors. *Nuclear instruments and methods A*, Volume 274(1989) 297-304.

SAEGUSA, J., KAWASAKI, K., MIHARA A., ITO M., YOSHIDA, M. Determination of detection efficiency curves of HPGe detectors on radioactivity measurement of volume samples *Applied Radiation and Isotopes*, 61 (2004), 1383-1390.

SCHÖNFELD E., DERSCH, R., “Table of Radionucléides”, (1996). Disponível em http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Cd-109_tables.pdf. Acesso em julho de 2010.

- SIMA O, CAZAN IL, DINESCU L, ARNOLD D. Efficiency calibration of high volume samples using the GESPECOR software. *Applied Radiation and Isotopes*, 61 (2004), 123-127.
- SCHÖNFELD E., DERSCH, R., “Table of Radionucléides”, (1999). Disponível em http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ho-166_tables.pdf. Acesso em julho de 2010.
- TASKAEVA, M.; TASKAEV, E.; PENEV, I. On the Preparation of Efficiency Calibration Standards for Gamma-ray Spectrometers. *Applied Radiation and Isotopes* 47 (1996) 981-990.
- UGLETVEIT, F., SINKKO, K., AOLTONEN, H., and FLEDT, W.; “A simple Method for Efficiency Calibration of Germanium Detectors,” *Regional Conference of the International Radiation Protection Association (IRPA) on the Radioecology of Natural and Artificial Radionuclide*, September 10-14, 1989: Visby Sweden, Publisher: Koeln: Germany, 474-479.
- VARGAS, M.J., TIMÓN, A.F., DÍAZ, N.C., SÁNCHEZ, D.P. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry *Applied Radiation and Isotopes* Vol. 57, (2002) 893-898
- VIDMAR, T.,”EFFETRAN-A “Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry,” *Nuclear instruments and Methods in Physics Research A*. Volume 550 (2005) 603-608.
- ZEVALLOS-CHAVEZ, J. Y. et al. “Study of the inactive layer of a Germanium detector: experimental and Monte Carlo simulation treatments”. In: INAC 2005: International Nuclear Atlantic Conference. Santos, SP: [s.n.], 2005.