AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Padronização de ^{68}Ga em Sistemas de Coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$

FLÁVIO WILLIAM LACERDA

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

Orientadora:
Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas

São Paulo
2013

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Padronização de Ga-68 em Sistemas de Coincidências $4\pi\beta-\gamma$

FLÁVIO WILLIAM LACERDA

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

Orientadora:
Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas

Versão Original
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2013

À minha esposa Priscila Maio

À minha família

Aos meus amigos

“ Não sei como o mundo me vê, mas eu me sinto como um garoto brincando na praia, contente em achar aqui e ali, uma pedra mais lisa ou uma concha mais bonita, mas tendo sempre diante de mim, ainda por descobrir, o grande oceano de verdades”.

Isaac Newton

Agradecimentos :

Antes de tudo agradeço a Deus por me oferecer o dom da vida e por colocar pessoas especiais em meu caminho, ingredientes essenciais para a realização desse trabalho. De forma especial deixo meu agradecimento:

De coração à Dra. Marina Fallone Koskinas minha orientadora, pela amizade, paciência, conselhos e dedicação durante toda a minha trajetória acadêmica pelo IPEN;

Ao Dr. Mauro da Silva Dias pelas sugestões, idéias, informações e principalmente pela inspiração;

Ao Dr. José Antônio Seneda por oferecer seus conhecimentos químicos de forma prestativa em nossa tentativa de produzir as fontes de ^{68}Ge - ^{68}Ga ;

Ao Centro de Radiofarmácia do IPEN, não só por oferecer as amostras de ^{68}Ga , usadas em todas as medições, mas também pela boa vontade de cada funcionário em nos atender;

Aos meus amigos Eliezer Antonio da Silva e Carlos Augusto Pires em me apresentar esse novo mundo;

À Msc. Ione M. Yamazaki, pela amizade e ajuda na preparação das fontes;

Ao Msc. Franco Braccaccio pelas conversas, informações e discussões;

Aos colegas amigos e funcionários do LMN por estarem sempre prontos a ajudarem;

À minha mãe Maria Eva Silva Lacerda (*in memoriam*) por sempre me incentivar nos estudos;

Ao meu pai Odilon Lindolfo de Lacerda por ser o meu herói e meu referencial;

Aos ex-alunos do LMN que deixaram suas contribuições para esse trabalho através de suas teses e dissertações;

Ao IPEN (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares) na pessoa do seu superintendente;

Ao CRPq (Centro do Reator de Pesquisas) por criar e oferecer condições adequadas na realização desse trabalho, tanto com recursos materiais, quanto com pessoas capacitadas;

À minha esposa Priscila Marques de Maio Lacerda por idealizar, planejar e executar junto comigo um grande sonho de sermos mestres em nossas respectivas áreas e estarmos lado a lado nessa realização;

Enfim, a todos que direta ou indiretamente colaboraram com este trabalho.

Padronização de ^{68}Ga em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

FLÁVIO WILLIAM LACERDA

Resumo

O presente trabalho tem como objetivo a padronização de ^{68}Ga , um emissor de pósitrons de meia-vida curta, usado em PET (Tomografia por Emissão de Pósitrons). A padronização do ^{68}Ga foi realizada em um sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, que consiste de um detector proporcional em geometria 4π a gás fluente acoplado a um detector de cristal semicondutor HPGe, para a detecção de raios gama. A aquisição de dados foi realizada por meio de um Sistema de Coincidência por Software (SCS), desenvolvido no Laboratório de Metrologia Nuclear (Laboratório de Metrologia Nuclear - LMN) no IPEN-CNEN / SP. Os resultados finais foram obtidos a partir de um ajuste de curva multiparamétrica aplicando-se uma metodologia que leva em consideração a matriz de covariância combinando os resultados experimentais com aqueles determinados pela simulação Monte Carlo.

^{68}Ga standardization by means of a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ coincidence system

FLÁVIO WILLIAM LACERDA

Abstract

The present work aims the standardization of ^{68}Ga , a positron emitter of short half-life used in PET (Positron Emission Tomography). The ^{68}Ga standardization was performed in a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ coincidence system that consists of a gas-flow proportional counter (PC) in 4π geometry coupled to a HPGe crystal, for gamma-ray detection. The data acquisition was carried out by means of a Software Coincidence System (SCS) developed at the Nuclear Metrology Laboratory (Laboratório de Metrologia Nuclear – LMN) at the IPEN-CNEN/SP. The final results were obtained from a multiple curve fitting applying a covariance matrix methodology combining experimental results with those determined by the Monte Carlo simulation.

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	1
2. OBJETIVO	3
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	4
3.1 RADIOATIVIDADE.....	4
3.2 TRANSIÇÕES NUCLEARES.....	6
3.2.1 DESINTEGRAÇÃO BETA (β^-)	7
3.2.2 DESINTEGRAÇÃO POR PÓSITRON(β^+)	7
3.2.3 TEORIA DE FERMÍ PARA PARTÍCULAS BETA E PÓSITRONS.....	8
3.3 CAPTURA ELETRÔNICA (CE).....	10
3.4 EMISSÃO DE ELÉTRONS AUGER E RAIOS-X.....	10
3.5 TRANSIÇÃO GAMA.....	11
3.5.1 EMISSÃO γ	11
3.5.2 CONVERSÃO INTERNA.....	12
3.5.2.1 Coeficiente de Conversão Interna (α_i).....	13
3.6 INTERAÇÃO DA RADIAÇÃO COM A MATÉRIA.....	13
3.6.1 PARTÍCULAS CARREGADAS LEVES (BETA E PÓSITRONS).....	14
3.6.2 FÓTONS.....	16
3.6.2.1 Efeito Fotoelétrico	17
3.6.2.2. Efeito Compton	18
3.6.2.3. Produção de Pares	18
4. MATERIAIS E MÉTODOS	21
4.1 MÉTODO DE COINCIDÊNCIAS.....	21
4.2 TÉCNICA DA EXTRAPOLAÇÃO LINEAR DA EFICIÊNCIA	22
4.3 PADRONIZAÇÃO DO ^{68}Ga	25
4.4 EXTRAPOLAÇÃO MULTIPARAMÉTRICA DA EFICIÊNCIA APLICADA AO ^{68}Ga	27
4.5 DETECTORES DE RADIAÇÃO	32

4.5.1 DETECTORES ENVOLVIDOS NO SISTEMA DE COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta-\gamma$	32
4.5.1.1 Detector Proporcional a Gás	33
4.5.1.2 Detector Proporcional 4π do LMN	35
4.5.1.3 Detectores Semicondutores de HPGe.....	36
4.6 SISTEMAS DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta-\gamma$ DO LMN DO IPEN E OS ARRANJOS ELETRÔNICOS.....	38
4.6.1 SISTEMA ELETRÔNICO CONVENCIONAL.....	39
4.6.2. SISTEMA ELETRÔNICO TIME TO AMPLITUDE CONVERTER (TAC).....	41
4.6.3. SISTEMA DE COINCIDÊNCIA POR SOFTWARE(SCS)	43
4.6.4 ARRANJO ELETRÔNICO DO SISTEMA DE COINCIDÊNCIA POR SOFTWARE (SCS)....	44
4.7 PREPARAÇÃO DAS FONTES.....	47
4.8 SOFTWARE PARA A ANÁLISE	47
4.8-1. APLICAÇÃO DO SOFTWARE DE ANÁLISE COM O EMPREGO DA EQUAÇÃO MULTIPARAMÉTRICA NA OBTENÇÃO DA ATIVIDADE DA FONTE	48
4.9 MÉTODO DE MONTE CARLO.....	52
4.9.1 APLICAÇÃO DO MMC AO MÉTODO DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta-\gamma$ DO LMN.....	53
4.9.2. VISED PARA O SISTEMA I.....	54
4.9.3 ARQUIVOS DE ENTRADA	55
4.9.4. ESPECTROS DE PÓSITRON PELA TEORIA DE FERMI.....	56
4.9.5. O PROGRAMA ESQUEMA.....	57
4.10. APLICAÇÃO DO MÉTODO DE MONTE CARLO AO PRESENTE TRABALHO	59
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	59
5.1 MEDIÇÃO 1.....	60
5.2 MEDIÇÃO 2.....	62
5.3. CONCLUSÃO	72
6.REFERÊNCIAS	73

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1	ESQUEMA DE DECAIMENTO DO ^{68}Ga	3
FIGURA 2	TABELA DE RADIONUCLÍDEOS.....	6
FIGURA 3	ESPECTRO TÍPICO DE UMA TRANSIÇÃO β^- PERMITIDA	9
FIGURA 4	ESPECTRO TÍPICO DE UMA TRANSIÇÃO β^+ PERMITIDA	9
FIGURA 5	EFEITO FOTOELÉTRICO	17
FIGURA 6	EFEITO COMPTON	18
FIGURA 7	PRODUÇÃO DE PARES.....	19
FIGURA 8	PROCESSO DE ANIQUILAÇÃO	19
FIGURA 9	OS TRÊS PROCESSOS DE INTERAÇÃO E SUAS REGIÕES.....	20
FIGURA 10	ESQUEMA DE DECAIMENTO DO ^{68}Ga SIMPLIFICADO	27
FIGURA 11	AS DIFERENTES REGIÕES DE OPERAÇÃO DOS DETECTORES A GÁS.....	33
FIGURA 12	ESQUEMA DOS CONTADORES PROPORCIONAIS EM GEOMETRIA 2π E 4π	34
FIGURA 13	VISTA EM CORTE TRANSVERSAL DO DETECTOR PROPORCIONAL DO LMN	35
FIGURA 14	REPRESENTAÇÃO ESQUEMÁTICA DAS BANDAS DE UM DETECTOR SEMICONDUTOR HPGE	36
FIGURA 15	DETECTORES DE RADIAÇÃO DO SISTEMA I DO LMN	38
FIGURA 16	DIAGRAMA DE BLOCOS DO SISTEMA CONVENCIONAL DE COINCIDÊNCIA.....	39
FIGURA 17	DIAGRAMA DE BLOCOS DO ARRANJO ELETRÔNICO DO SISTEMA TAC	41
FIGURA 18	ESPECTRO DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta-\gamma$ OBTIDO PELO SISTEMA ELETRÔNICO TAC.....	42
FIGURA 19	SISTEMA DE COINCIDÊNCIA POR SOFTWARE	43
FIGURA 20	SISTEMA DE AQUISIÇÃO DE DADOS DA FONTE RADIOATIVA PARA O COMPUTADOR	44
FIGURA 21	PAINEL DE CONEXÃO E CABO DE DADOS	45
FIGURA 22	PLACA DE AQUISIÇÃO DE DADOS PCI-6132.....	46

FIGURA 23	ARANDELA DE AÇO INOXIDÁVEL COM FILME DE COLLODION METALIZADO COM OURO CONTENDO A SOLUÇÃO RADIOATIVA DE ^{68}Ga	47
FIGURA 24	FAIXA DE VALORES DE PÓSITRON TÍPICA DO SCTAC 6,0 ESCOLHIDA PELO USUÁRIO.....	48
FIGURA 25	JANELAS GAMA TÍPICA DO SCTAC 6,0 QUE PODEM SER ESCOLHIDAS PELO USUÁRIO	49
FIGURA 26	ESPECTRO DE COINCIDÊNCIA $4\pi\beta-\gamma$ OBTIDO PELO SISTEMA ELETRÔNICO SCTAC 6.0	50
FIGURA 27	GEOMETRIA DO ARRANJO EXPERIMENTAL PARA O SISTEMA I, CONSIDERADA NA SIMULAÇÃO OBTIDA ATRAVÉS DO CÓDIGO VISED.	54
FIGURA 28	EXEMPLO DE ESPECTRO DE PÓSITRON ATRAVÉS DA TEORIA DE FERMI.....	56
FIGURA 29	FLUXOGRAMA DO PROGRAMA ESQUEMA VERSÃO 09	58
FIGURA 30	COMPARAÇÃO ENTRE O ESPECTRO GAMA EXPERIMENTAL DO HPGE E O SIMULADO POR MONTE CARLO	70
FIGURA 31	CURVA DE EXTRAPOLAÇÃO PREVISTA PELA SIMULAÇÃO DE MONTE CARLO COM A APLICAÇÃO DA EQUAÇÃO MULTIPARAMÉTRICA	71
FIGURA 32	CURVA DE EXTRAPOLAÇÃO OBTIDA EXTRAPOLAÇÃO OBTIDA EXPERIMENTALMENTE COM A APLICAÇÃO DA EQUAÇÃO MULTIPARAMÉTRICA	71

LISTA DE TABELAS

TABELA 1	TIPOS DE INTERAÇÕES DE FÓTONS E OS SEUS EFEITOS	16
TABELA 2	ENERGIAS E INTENSIDADES DOS PROCESSOS DE DESINTEGRAÇÃO DO ^{68}Ga	26
TABELA 3	ATIVIDADE DA FONTE COM INEFICIÊNCIA PARA AS JANELAS DE GAMA DE 511 KEV E 1077,35 KEV	51
TABELA 4	APRESENTA OS RESULTADOS PARA A PADRONIZAÇÃO DA FONTE	51
TABELA 5	MATRIZ DOS PARÂMETROS OBTIDA POR AJUSTE MULTIPARA- MÉTRICO DOS DADOS DA SIMULAÇÃO DE MONTE CARLO...	59
TABELA 6.1	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 1.....	60
TABELA 6.2	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 2.....	60
TABELA 6.3	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 3.....	61
TABELA 6.4	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 4.....	61
TABELA 7	MATRIZ DOS PARÂMETROS OBTIDOS POR AJUSTE MULTIPARAMÉTRICO DE TODAS AS FONTES USADAS PARA A MEDIÇÃO 1	62
TABELA 8	COMPARAÇÃO DOS RESULTADOS EXPERIMENTAIS COM OS RESULTADOS OBTIDOS PELO METODO DE MONTE CARLO ...	62
TABELA 9.1	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 1.....	63
TABELA 9.2	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 2.....	64
TABELA 9.3	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 3.....	65
TABELA 9.4	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 4.....	66
TABELA 9.5	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 5.....	67
TABELA 9.6	RESULTADOS OBTIDOS DA FONTE 6.....	68
TABELA 10	PARÂMETROS OBTIDOS POR AJUSTE MULTIPARAMÉTRICO DOS RESULTADOS DE TODAS AS MEDIDAS DAS FONTES USADAS PARA A MEDIÇÃO 2.....	69
TABELA 11	COMPARAÇÃO DOS RESULTADOS EXPERIMENTAIS.....	69
TABELA 12	COMPARAÇÃO DOS RESULTADOS DAS DUAS MEDIÇÕES DA ATIVIDADE EXTRAPOLADA	69

1. INTRODUÇÃO

Segundo o Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial – INMETRO, a metrologia é a ciência que abrange todos os aspectos teóricos e experimentais relativos às medições, qualquer que seja a incerteza em qualquer campo da ciência ou tecnologia e que busca o desenvolvimento de padrões rastreáveis^[1].

Os padrões podem ser classificados em primário, secundário, terciário, etc. O grau de exatidão e dependência entre cada padrão é o que caracteriza essa classificação. Para um padrão ser classificado como primário ou absoluto, precisará não depender de nenhum outro e o seu resultado, deve vir apenas de grandezas observáveis. A busca por métodos de medidas considerados primários ou absolutos justifica-se pelo alto nível de confiabilidade que apresentam seus resultados.

A radiação nuclear desde sua descoberta até os dias atuais vem sendo empregada em muitas aplicações tecnológicas de vários setores científicos: como na medicina nuclear, para diagnóstico e para terapia; no meio ambiente, na pesquisa; na indústria, entre outros^[2].

Para que seja possível aplicar com sucesso, a radiação nuclear em diversas áreas, é necessário que as medidas radioativas empregadas, sejam confiáveis, dessa forma o uso de métodos absolutos ou primários, na padronização de radionuclídeos garante que o progresso das aplicações tecnológicas nucleares vai continuar^[3-5].

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), do IPEN-CNEN/SP, sediado em São Paulo, é um laboratório regional que tem como objetivo principal, o desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos e na determinação de parâmetros nucleares. Atualmente seus estudos estão direcionados ao desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos de uso em medicina nuclear, de modo a garantir a determinação da atividade com boa exatidão, assim como sua rastreabilidade com relação aos padrões internacionais^[1].

Cada radionuclídeo tem sua especificidade, e sua padronização requer um estudo cuidadoso e detalhado do seu esquema de decaimento e do tipo de sistema de detecção que será utilizado^[6,7].

Um dos métodos primários mais utilizados na padronização de radionuclídeos é o método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$, o qual é aplicável para radionuclídeos que emitem radiações distintas e simultâneas, tais como: $\alpha-\gamma$, $\beta-\gamma$, RX- γ ^[3], etc., envolvendo para isso o uso de dois detectores diferentes, um para cada tipo de radiação emitida, constituindo um sistema denominado sistema de coincidências^[6,7].

O planejamento para a medição da atividade de um radionuclídeo deve levar em conta o seu esquema de desintegração e a contribuição de cada uma das radiações emitidas no espectro final dos detectores. Para a maioria dos radionuclídeos o esquema de desintegração é complexo envolvendo vários ramos de decaimento, com variados tipos de emissões radioativas^[3].

Para que o método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ possibilite a otimização das medidas, de modo a minimizar a incerteza no valor da atividade, é necessário um planejamento detalhado das condições experimentais^[8,9]; para isso, o LMN tem procurado desenvolver meios para aprimorar e auxiliar nos ajustes do sistema de medida, para a obtenção de resultados mais precisos, utilizando técnicas de simulação pelo método de Monte Carlo, aplicado aos sistemas de coincidências e um sistema digital de análise, o Sistema de Coincidência por Software (SCS).

O radionuclídeo selecionado para este trabalho foi o ^{68}Ga (meia-vida 67,7 minutos) um radioisótopo de grande interesse para a medicina nuclear^[10], utilizado como simulador para aplicação em tomografia por emissão de pósitrons – PET e para uso como fonte padrão na aferição de activímetros utilizados em serviços de medicina nuclear, que empregam fontes de ^{18}F (meia-vida 2,8 horas), uma vez que apresenta um decaimento semelhante^[8].

O ^{68}Ga é obtido do gerador de $^{68}\text{Ge}-^{68}\text{Ga}$, um gerador de radionuclídeos é um dispositivo para se obter, através de uma eluição do radionuclídeo “filho” formado através do decaimento do radionuclídeo “pai”, que possui uma meia vida física (meia-vida 279 dias) maior em relação ao radionuclídeo filho.

2. OBJETIVO

Considerando o esquema de decaimento descrito na figura 1, o objetivo deste trabalho, é o desenvolvimento do método de padronização do ^{68}Ga , em sistema de coincidências $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$, constituído de um detector proporcional em geometria 4π operado a gás fluente acoplado ao detector HPGe, utilizando-se o sistema de coincidências por software (SCS)^[11] para análise dos dados e aplicação da simulação de Monte Carlo por meio do programa Esquema versão 09 para simulação do sistema de coincidências utilizado.

Figura 1 - Esquema de decaimento do ^{68}Ga ^[12]

3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Nesta seção estão apresentados os fundamentos teóricos que serão utilizados de forma direta ou indireta nos equipamentos e dispositivos para a realização do trabalho proposto.

3.1 Radioatividade

O fenômeno radioatividade é quantificado atualmente, pelo número de transições nucleares que ocorrem em uma unidade de tempo, no sistema internacional é conhecido como becquerel (Bq), que equivale a 1s^{-1} anteriormente, quando Madame Curie estudava o comportamento radioativo do elemento químico rádio (Ra) ^[6,13], quantificou a radioatividade em termos da massa de um grama desse elemento que recebeu o nome de “currie “ (Ci) que corresponde a $3,7 \times 10^{10} \text{s}^{-1}$.

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$$

e

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{Bq}$$

A quantidade da atividade é usada como uma medida da radioatividade e é definida pelo NCRP ^[14] da seguinte forma: "A quantidade da atividade de um nuclídeo em um estado de energia específico em um dado instante de tempo é, o valor esperado do número de transições nucleares espontâneas por unidade de tempo daquele estado de energia".

Dentro de um fenômeno da radioatividade não tem como prever quando o átomo radioativo irá decair, qual caminho no esquema de desintegração será seguido dentro de um intervalo de tempo considerado, portanto, trata-se de um fenômeno estocástico. Apesar dessas imprevisões, é possível obter um valor esperado do número de átomos decaindo num dado intervalo de tempo, pois se as taxas de contagens não forem muito altas, o decaimento seguirá uma distribuição densidade de probabilidade de Poisson.

A taxa de decaimento do radionuclídeo no tempo é definida como a atividade ^[7,15,16].

$$A = -\frac{dN}{dt} = N\lambda \quad (1)$$

Onde:

λ é a constante de decaimento radioativo

A é a atividade

N é o número de núcleos radioativos

A atividade específica é a atividade por unidade de massa do elemento radioativo, e é dada em Bq/g.

Existe uma probabilidade λ_i associada a cada modo de decaimento de um nível. Se um estado excitado decai para vários níveis de menor energia, as probabilidades de transição associadas são todas independentes. A probabilidade total λ , também conhecida como a constante de decaimento radioativo, será a soma dos valores individuais, portanto ^[7,13]:

$$\lambda = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3 + \dots \quad (2)$$

Outra propriedade importante de um estado nuclear é sua meia-vida, que é dada por ^[13]:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (3)$$

A meia-vida de um radionuclídeo representa o intervalo de tempo necessário de decaimento, para que a atividade fique com a metade do valor do seu valor inicial.

3.2 Transições Nucleares

Conforme se observa na tabela de radionuclídeo apresentada na figura 2, um núcleo atômico quando está estável, representado pelo pontos pretos, fica com uma proporção ideal entre o número de prótons e o de nêutrons, mas caso haja instabilidade nessa proporção ou excesso de massa, o núcleo estará instável, ou seja, radioativo e são representados pelos pontos brancos e vermelhos. O núcleo instável buscará sua estabilidade emitindo um ou mais tipos de radiação, até atingir sua condição de equilíbrio.

Figura 2 - Tabela de Radionuclídeos ^[17]

3.2.1 Desintegração Beta (β^-)

Núcleos com excesso de nêutrons estão mais a esquerda da linha de estabilidade do gráfico da figura 2, e tendem a estabilizar-se convertendo um nêutron em um próton, com emissão de um elétron do núcleo do átomo, também chamado de partícula beta (β^-), que carrega o número atômico para a direita no gráfico, em busca da linha de estabilidade, há também a emissão de um anti-neutrino ($\bar{\nu}$), de massa e carga desprezíveis^[6,13].

A energia do processo é compartilhada entre a partícula beta (β^-) e o anti-neutrino ($\bar{\nu}$), e o espectro de energia será contínuo, desde zero até um valor de energia máxima disponível.

Nesse processo não há alteração da massa só do número atômico, a equação por meio do balanço de carga e massa deste decaimento é dada por^[6,7,13]:

Onde:

A_ZX é o núcleo pai

${}^A_{Z+1}Y$ é o núcleo filho

β^- é a partícula beta

$\bar{\nu}$ é a partícula de anti-neutrino

Q é a energia do processo

3.2.2 Desintegração Por Póstron(β^+)

Núcleos com excesso de prótons estão mais a direita da linha de estabilidade do gráfico da figura 2, e tendem a estabilizar-se convertendo um próton em um nêutron, e ocorre a emissão de um elétron positivo do núcleo atômico, também chamado de póstron (β^+), que no gráfico carrega o número atômico para a esquerda em busca da linha de estabilidade, há também a emissão de um neutrino(ν), de massa e carga desprezíveis.

A energia do processo é compartilhada entre o póstron (β^+) e o neutrino(ν), e o espectro de energia será contínuo, desde zero até um valor de energia

máxima disponível, sendo que a energia disponível no processo deve ser superior a 1,022 MeV, de modo a permitir a criação de um par elétron-pósitron.

Nesse processo também não há alteração da massa, só do número atômico, e a equação por meio do balanço de carga e massa deste decaimento é dada por^[6,13]:

Onde:

A_ZX é o núcleo pai

${}^A_{Z-1}Y$ é o núcleo filho

β^+ é a partícula de pósitron

ν é a partícula de anti-neutrino

Q é a energia do processo

3.2.3 Teoria de Fermi Para Partículas Beta e Pósitrons

O espectro de energia tanto das partículas beta como dos pósitrons, podem ser descritos pela Teoria de Fermi^[18,19]. O número de partículas beta ou pósitrons emitidos com energia W pode ser dado por:

$$N(W) = \frac{g}{2\pi^3} W (W^2 - 1)^{\frac{1}{2}} (W_0 - W)^2 F(W, Z) C_n \quad (6)$$

Onde :

$g = 1,41 \times 10^{-56} \text{ J.cm}^3$ é a constante de acoplamento para interações fracas.

$W_0 = (Q+1)$ para transições beta

$W_0 = (Q-1)$ para transições β^+

$F(W, Z)$ é a função de Fermi

C_n é o fator de forma

As figuras a seguir, representam espectros típicos de transições permitidas^[7] pela teoria de Fermi sendo que, a figura 3 representa um espectro β^- e a figura 4 representa um espectro β^+ . Nas figuras $N(E)$ representa o número de partículas com energia entre E e $E + dE$.

Figura 3 – Espectro típico de uma transição β^- permitida

Figura 4– Espectro típico de uma transição β^+ permitida

3.3 Captura Eletrônica (CE)

Para núcleos com excesso de prótons que estão mais a direita da linha de estabilidade no gráfico da figura 3, o núcleo pode capturar um elétron orbital e se estabilizar convertendo um próton em um nêutron, emitindo com isso um neutrino monoenergético. O processo pode ser descrito pela seguinte expressão:

A probabilidade de captura depende do nível de energia em que se encontra o elétron, sendo maior para a camada K e vai decrescendo para as camadas L, M, etc. Na desintegração, a carga nuclear diminui de uma unidade e a carga atômica permanece constante [7].

Neste processo, ocorre uma vacância na camada atômica que será preenchido por outro elétron atômico. Para desintegrações com energia maior que duas vezes a energia de ligação da camada K, o elétron capturado pertence a uma camada K em 90% dos casos, e os 10% restantes a uma camada L ou maior. No processo de desexcitação do nuclídeo, o preenchimento da vacância deixado pelo processo de captura eletrônica é acompanhado da emissão de raios-X característicos ou elétrons Auger [13].

3.4 Emissão de Elétrons Auger e Raios-X

Quando um elétron é removido de uma das camadas eletrônicas mais interna de um átomo por qualquer processo, ocorre uma vacância, que será preenchida com a transição de um elétron, partindo de um nível de energia mais alta para outro, de energia mais baixa, que pode dar origem à emissão de radiação eletromagnética denominada raios-X, ou essa energia de transição pode ser transferida diretamente a um dos outros elétrons orbitais, que será ejetado do átomo e ele será chamado de elétron Auger.

A energia é determinada pela diferença de níveis entre o estado inicial e final da transição. A probabilidade de emissão, denominada rendimento de

fluorescência (ω), cresce de acordo com o número atômico. Quanto maior o número atômico maior será o valor do rendimento de fluorescência, e maior será a probabilidade de emissão de raios-X.

A emissão de raios-X e elétrons Auger são complementares entre si, por isso que a probabilidade de emissão de elétrons Auger ($1 - \omega$), será maior para átomos de menor número atômico.

3.5 Transição Gama

Sempre que o núcleo atingir um dos seus estados excitados, ele tende a emitir a energia excedente dando origem a uma transição gama ^[7]. Ela se manifesta espontaneamente pela emissão de um fóton gama ou pela transferência da energia excedente para um elétron da camada atômica, denominado elétron de conversão e, mais raramente quando as condições de energia permitem, ocorre por um par elétron-pósitron ^[13].

A intensidade da transição gama é dada por ^[7]:

$$T_{\gamma} = I_{\gamma} + I_{ec} + I_{e^{\pm}} \quad (9)$$

Onde:

I_{γ} é a probabilidade de emissão gama,

I_{ec} é a probabilidade de emissão de elétron de conversão

$I_{e^{\pm}}$ é a probabilidade de ocorrer o par elétron-pósitron

3.5.1 Emissão γ

É um processo no qual a energia da transição gama é emitida sob a forma de uma radiação eletromagnética (fóton), denominada radiação gama ou raio gama. A energia do raio gama corresponde à diferença entre as energias do estado inicial e do estado final do núcleo considerado. A emissão γ possui um espectro discreto.

A energia do raio gama emitido é dada por^[10]:

$$E_{\gamma} = (E_i - E_f) - E_r \quad (10)$$

Onde:

E_{γ} é a energia do raio gama

$E_i - E_f$ é a diferença de energia entre os níveis inicial e final da transição gama.

E_r é a energia de recuo do estado final do núcleo, pode ser considerada praticamente nula.

3.5.2 Conversão Interna

Quando numa transição gama, a energia excedente é transferida do núcleo excitado para um elétron orbital, o processo será chamado de conversão interna e não há emissão de raios γ . Neste caso, a energia em excesso do núcleo é transferida a um elétron orbital, e ele será emitido com uma energia dada por:

$$E_{CI} = E_{\gamma} - E_X \quad (11)$$

Nesta expressão, E_x representa a energia de ligação do elétron orbital da camada X que pode ser (K, L, M, N...).

O processo de conversão interna ocorre, com maior probabilidade, quando a energia da transição se aproxima da energia de ligação do elétron. Portanto, para altas energias este processo possui probabilidade muito pequena^[13].

Diferentemente da desintegração β os elétrons de conversão interna são monoenergéticos, tendo energias um pouco menores, com relação aos fótons gama com os quais concorrem na faixa de energias entre keV a alguns MeV^[7].

3.5.2.1 Coeficiente de Conversão Interna (α_t)

A razão entre a probabilidade de emissão do elétron de conversão interna de uma camada eletrônica e da emissão de um raio- γ é chamada de coeficiente de conversão interna para a aquela camada considerada.

O coeficiente de conversão interna total (α_t) é igual à soma dos coeficientes de conversão das várias camadas ou subcamadas atômicas, e é dado por^[7]:

$$\alpha_t = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots = \frac{I_{ec}}{I_\gamma} \quad (12)$$

Sendo que I_{ec} é a probabilidade total de emissão de elétrons de conversão interna da transição em questão ^[7].

A partir destas definições, obtêm-se as seguintes relações :

$$I_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha_t} \cdot T_\gamma \quad (13)$$

$$I_{ec} = \frac{\alpha_t}{1 + \alpha_t} \cdot T_\gamma \quad (14)$$

T_γ é a probabilidade total da transição, $T_\gamma = I_\gamma + I_{ec}$.

3.6 Interação da Radiação Com a Matéria

A radiação emitida por um radionuclídeo que atravessa um meio material é chamada de radiação incidente e o meio material é chamado de meio absorvedor. A radiação incidente ao interagir com o meio absorvedor transfere energia para ele ^[6]. Ela apresenta-se na forma de partículas alfa e beta, ou por emissão de fótons (gama). A transferência de energia para o meio absorvedor ocorre principalmente por ionização e por excitação.

Quando na transferência de energia do meio incidente acontecer remoção de elétrons dos átomos do meio absorvedor, o processo será denominado de ionização. Entretanto, se a energia absorvida for insuficiente para remover elétrons, o processo será chamado de excitação. Outra forma de transferência de energia é quando uma partícula carregada do meio incidente interagir com o núcleo do átomo do meio absorvedor ocorrendo um freiamento da partícula incidente ou *Bremsstrahlung*^[6].

3.6.1 Partículas Carregadas Leves (Beta e Póstrons)

Partículas beta ou pósitron interagem com a matéria através de forças Coulombianas principalmente por colisão e radiação, são consideradas partículas carregadas leves, as que têm massa de repouso semelhante a do elétron, elas perdem uma boa quantidade de energia numa única colisão^[13], sendo muito mais facilmente desviadas.

Para o caso de interação de partículas carregadas leves por colisão têm-se as seguintes possibilidades:

- Colisões elásticas com elétrons atômicos : A energia incidente é pequena da ordem de 100 eV, ocorrendo na colisão uma conservação da energia e da quantidade de movimento, e a energia transferida é insuficiente para ionizar os elétrons atingidos.
- Colisões inelásticas com elétrons atômicos: Esse é o principal modo de diminuição de energia $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{col}$ para cada colisão. Nesse processo os elétrons podem sofrer ionização ou excitação.
- Colisões elásticas com núcleos atômicos: Ocorre a perda de energia da partícula incidente por conservação de quantidade de movimento entre as duas partículas, nesse processo ocorre a deflexão (desvio), mas não ocorre ionização e excitação do átomos e moléculas do meio material.

- Perda de energia apenas por colisões inelásticas com núcleos atômicos:

Também conhecida como perda de energia por radiação $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{rad}$.

Partículas leves com energias elevadas sofrem deflexões, mas em algumas dessas interações pode ser emitido um fóton de radiação e acontece, com isso, uma perda de energia cinética por radiação, esse fenômeno é *Bremsstrahlung* ^[15].

Portanto, a perda total de energia das partículas carregadas leves $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{tot}$ será dada por ^[6]:

$$\left(\frac{dE}{dX}\right)_{tot} = \left(\frac{dE}{dX}\right)_{col} + \left(\frac{dE}{dX}\right)_{rad} \quad (15)$$

Existe uma relação entre a perda de energia em função da energia do elétron incidente. Em baixas energias (abaixo de 1 MeV), a perda ocorre por colisão $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{col}$, sendo que a perda de energia por radiação $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{rad}$, se dará para valores mais alto de energia (acima de 1 MeV).

Quando uma partícula carregada passa perto do núcleo e interage com o seu campo coulombiano, há uma mudança na sua trajetória e ocorre a desaceleração, na qual denominamos "*Bremsstrahlung*", e como consequência, a radiação é emitida na forma de raios-X.

A razão entre a perda de energia por radiação e colisão para elétrons é dada aproximadamente por ^[6]:

$$\frac{\left(\frac{dE}{dX}\right)_{rad}}{\left(\frac{dE}{dX}\right)_{col}} = \frac{E \cdot Z}{700} \quad (16)$$

Onde :

Z é o número atômico

E é a energia em MeV

3.6.2 Fótons

As interações dos fótons X e γ com a matéria dependem somente de suas energias e do meio material que eles atravessam, podendo cada um deles perder toda ou quase toda a sua energia numa única interação. A energia de um fóton, seja X ou γ é dada por $E = h\nu$.

Existem diversas maneiras dos fótons interagirem com a matéria e obtém-se como resultado espalhamento ou absorção dos raios incidentes:

Tabela 1-Tipos de interações de fótons e os seus efeitos ^[13]

Tipo de interação	Efeito da interação
1- Interação com elétrons atômicos	a) absorção completa
2- Interação com nucleons	b) espalhamento elástico (coerente)
3- Interação com o campo elétrico ao redor do núcleo ou elétron	c) espalhamento inelástico (incoerente)
4- Interação com o campo nuclear ao redor dos nucleons	

Conforme tabela 1, combina-se os tipos de interação dos fótons com o meio material, com os efeitos da interação, obtendo com isso, vários processos diferentes em que o fóton pode ser absorvido ou espalhado e os principais processos são: efeito fotoelétrico, efeito *Compton* e produção de pares.

3.6.2.1 Efeito Fotoelétrico

Quando um fóton incide num meio material e sua energia é transferida totalmente para um único elétron orbital de algum átomo do meio, fazendo com que o elétron seja ejetado, ocorre o efeito fotoelétrico.

Figura 5 - Efeito fotoelétrico

A energia E_{e^-} do elétron ejetado, é a diferença entre a energia $h\nu$ do fóton incidente e a energia W de ligação do elétron orbital:

$$E_{e^-} = h\nu - W \quad (17)$$

O efeito fotoelétrico é predominante para baixas energias e para elementos de elevado número atômico^[6], sendo proporcional a Z^5 .

Devido à alta probabilidade de interação fotoelétrica com elementos de número atômico elevado, utiliza-se como blindagem elementos como o chumbo para raios-X e para radiação gama de baixas energias.

3.6.2.2. Efeito Compton

Ocorre quando um fóton incide sobre um elétron de um dos átomos do meio absorvedor, no qual o elétron recebe apenas parte da energia da radiação incidente o fóton passará a ter energia menor que a inicial e outra direção de propagação, esse processo é conhecido como efeito Compton, como descrito na figura 6.

Figura 6 - Efeito Compton

O efeito Compton é uma interação entre o fóton e um elétron de energia de ligação muito baixa ou quase livre, isto é, com energia de ligação bem baixa quando comparada com a energia do fóton incidente, que é uma energia intermediária, geralmente envolve elétrons das camadas mais externas do átomo, sendo mais provável à medida que a energia do fóton aumenta.

Compton deduziu a equação da variação de comprimento de onda do fóton desviado, que é escrita da seguinte maneira ^[13]:

$$\lambda' - \lambda = \frac{h\nu}{m_0c^2} \quad (18)$$

3.6.2.3. Produção de Pares

Um fóton incidente possuindo energia mínima de 1,022 MeV, que corresponde a duas vezes a massa de repouso do elétron ($2m_0c^2$), ao se aproximar do núcleo do átomo de um meio absorvedor, interage com o campo coulombiano desse núcleo, e faz com que o fóton seja totalmente absorvido e, em seu lugar apareça um par elétron (e^-) pósitron (e^+), ou seja, partícula e antipartícula. Por essa razão o fenômeno é conhecido como produção de pares e este processo pode ser ilustrado pela figura 7.

Figura 7 - Produção de pares

A energia cinética do elétron negativo e a do pósitron são iguais e pode ser dada por pela seguinte equação ^[7]:

$$E_{e^-} = E_{e^+} = \frac{E_\gamma - 2m_0c^2}{2} \quad (19)$$

Onde :

E_γ é a energia do fóton incidente

E_{e^-} é a energia do elétron

E_{e^+} é a energia do pósitron

$2m_0c^2$ é o dobro da massa de repouso do elétron que corresponde a energia mínima para ocorrer o fenômeno.

O pósitron, após ser criado, perde sua energia no meio absorvedor interagindo com algum elétron do meio e ocorre a aniquilação de ambos originando dois fótons gama de 0,511 MeV conforme figura 8.

Figura 8 - Processo de aniquilação

Na figura 9, observa-se a importância relativa dos três processos principais da interação gama com a matéria, para diferentes energias de gama e materiais do meio absorvedor. A linha mais a esquerda do gráfico, representa a energia

para o qual a absorção fotoelétrica e espalhamento Compton são igualmente prováveis, como uma função do número atômico do absorvedor. A linha mais a direita do gráfico, representa a energia para o qual o espalhamento Compton e produção de pares são igualmente prováveis. No gráfico, também, são mostradas três áreas aonde são mais prováveis de ocorrer cada um dos principais processos de interação gama com a matéria aqui apresentados.

Figura 9 - Os três processos de interação e suas regiões ^[6]

4. MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 Método de Coincidências

O método de coincidências é um método absoluto de medidas utilizado em padronizações de radionuclídeos que se desintegram pela emissão simultânea de duas radiações distintas, como α - γ , β - γ , entre outras. Baseia-se no uso de dois detectores de radiação distintos, um para cada tipo de radiação emitida, e um módulo para a detecção dos eventos coincidentes detectados simultaneamente nos dois detectores dentro de um pequeno intervalo de tempo estabelecido (tempo de resolução)^[3].

Considerando-se um caso genérico com esquema de decaimento simples, onde a desintegração se dá pela emissão de uma partícula β (beta), seguida de radiação γ (gama), as taxas de contagem registradas em cada uma das vias de detecção são dadas por:

$$N_{\beta}=N_0\varepsilon_{\beta} \quad (20)$$

$$N_{\gamma}=N_0\varepsilon_{\gamma} \quad (21)$$

$$N_C=N_0\varepsilon_{\beta}\varepsilon_{\gamma} \quad (22)$$

Onde:

N_0 é a atividade da fonte

N_{β} é a taxa de contagens da via beta

N_{γ} é a taxa de contagem da via gama

N_C é a taxa de contagens em coincidências

ε_{β} é a eficiência de detecção da via beta

ε_{γ} é a eficiência de detecção da via gama

Multiplicando-se (20) e (21) e dividindo-se o resultado por (22) conclui-se que :

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_C}=N_0 \quad (23)$$

A expressão $\frac{N_C}{N_{\gamma}}$ recebe o nome de parâmetro de eficiência, de modo que a atividade do radionuclídeo pode ser determinada apenas pelas taxas de contagem observadas, não dependendo do conhecimento de nenhum outro dado. O método de coincidências, portanto, é considerado um método primário ou absoluto.

4.2 Técnica da Extrapolação Linear da Eficiência

Na maioria das vezes os radionuclídeos apresentam esquemas de decaimento mais complexos, isto é, com vários ramos beta seguidos da emissão gama coincidente, além de emissão de elétrons de conversão interna, e não podendo deixar de lado outros parâmetros intrínsecos ao método de medida, como por exemplo a sensibilidade de um detector a outro tipo de radiação a qual ele não se destina. Portanto, as equações já citadas aqui são alteradas, e a taxa de desintegração passa a depender dos parâmetros do esquema de decaimento como descrito nas equações abaixo para um emissor $\beta-\gamma$ com n ramos beta ^[3].

$$N_{\beta}=N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1-\varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} \varepsilon_{\beta \gamma}}{1+\alpha} \right)_r \right] \quad (24)$$

$$N_{\gamma}=N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1+\alpha_r} \quad (25)$$

$$N_C= N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r}}{1+\alpha_r} + (1-\varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right] \quad (26)$$

Onde:

α é o coeficiente de conversão interna total da r-ésima transição gama

ε_{ec} é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão interna

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ é a eficiência do detector beta para a radiação gama

$\varepsilon_{\gamma r}$ é a eficiência do detector gama para o r-ésimo grupo beta

$\varepsilon_{\beta r}$ é a eficiência do detector beta para o r-ésimo grupo beta

ε_{cr} é a probabilidade de se registrar uma coincidência quando o ramo beta não é detectado, ou ocorrer uma coincidência $\gamma-\gamma$

a_r é o coeficiente do r-ésimo ramo beta

A equação (23) passa a ser escrita da seguinte forma :

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) + \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \sum a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta r} \varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right]} \quad (27)$$

Da equação (27), nota-se que a determinação de N_0 depende do conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração do radionuclídeo e das eficiências de detecção dos detectores utilizados, o que contraria o princípio do método de coincidências.

Para solucionar o problema foi proposto por Campion e Baerg^[4,5], que a determinação de N_0 só será possível, se for estabelecida uma relação funcional entre N_{β} e o parâmetro de eficiência, tal que N_{β} tenderá a N_0 ($N_{\beta} \rightarrow N_0$) quando o parâmetro de eficiência tender a 1, ou seja, $\left(\frac{N_C}{N_{\gamma}} \rightarrow 1 \right)$.

Esta condição ocorre quando a eficiência dos vários ramos beta ($\varepsilon_{\beta r}$) puder ser representada como uma função de uma única eficiência ($\varepsilon_{\beta s}$), de modo que N_{β} seja simplesmente o resultado de uma função F do parâmetro de eficiência, tal que:

$$N_{\beta} = N_0 F \left(\frac{N_C}{N_{\gamma}} \right) \quad (28)$$

Observa-se, que a atividade N_0 será obtida através de N_β nas seguintes condições: $F \rightarrow 1$ quando $\frac{N_C}{N_\gamma} \rightarrow 1$ sendo esta a fórmula de coincidência generalizada, que pode ser rescrita de uma forma graficamente mais adequada, utilizando a razão $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C}$ como variável dependente e $\left(\frac{1 - \frac{N_C}{N_\gamma}}{\frac{N_C}{N_\gamma}}\right)$ como variável independente, obtendo uma função G que apresenta uma variação mais lenta que a função F :

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_0 G\left(\frac{1 - \frac{N_C}{N_\gamma}}{\frac{N_C}{N_\gamma}}\right) \quad (29)$$

Dessa forma quando a função $G \rightarrow 1$ e $\left(\frac{1 - \frac{N_C}{N_\gamma}}{\frac{N_C}{N_\gamma}}\right) \rightarrow 0$, tem-se $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} \rightarrow N_0$.

Para obtenção da atividade N_0 , deve-se determinar experimentalmente a função G pela variação do parâmetro de eficiência, por meio do uso de absorvedores externos, por auto-absorção na fonte, por discriminação eletrônica, ou qualquer outro método que possibilite esta variação, construir um gráfico de $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C}$ versus $\left(\frac{1 - \frac{N_C}{N_\gamma}}{\frac{N_C}{N_\gamma}}\right)$ e o valor de N_0 será o valor extrapolado obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais.

Geralmente, são ajustadas retas, onde o coeficiente angular corresponde à correção devido ao esquema de desintegração e o coeficiente linear à taxa de desintegração procurada. Esta curva é denominada curva de extrapolação linear da eficiência.

4.3 Padronização do ^{68}Ga

O ^{68}Ga decai com uma meia-vida de 67,7 minutos pela emissão de pósitrons e pelo processo de captura eletrônica. A emissão de pósitron de 1899 keV ocorre em 87,94 % diretamente para o estado fundamental do ^{68}Zn e 1,2 % populando o nível de 1077,35 keV. O decaimento pelo processo de captura eletrônica ocorre com 8,7 % para o estado fundamental e popula o nível de 1077,35 keV do ^{68}Zn com uma probabilidade de 1,79 %. A desexcitação deste nível ocorre pela emissão da radiação gama de 1077,35 keV, conforme o esquema de decaimento exibido na figura 1.

Na tabela 2 são listados os processos de desintegração, as energias e as intensidades dos ramos de captura eletrônica e radiação gama.

Tabela 2 - Energias e Intensidades dos processos de desintegração do ^{68}Ga [12]

Tipo de Radiação	Energia (keV)	Probabilidade de emissão por desintegração(%)		
Captura Eletrônica			Probabilidade de ocorrer captura eletrônica na camada K (P_K)	Probabilidade de ocorrer captura eletrônica na camada L (P_L)
$\varepsilon_{0,0}$	2921,1(12)	8,71(12)	0,8847 (15)	0,0980 (14)
$\varepsilon_{0,1}$	1843,7(12)	1,79(4)	0,8844 (15)	0,0983 (14)
Transição β^+				
$\beta_{0,0}^+$	1899,1(12)	87,94(12)		
$\beta_{0,1}^+$	821,7(12)	1,20(3)		
Transição γ			coeficiente de conversão interna para a camada K (α_K)	coeficiente de conversão interna total (α_t)
$\gamma_{1,0}(\text{Zn})$	1077,35 (5)	3,22(3)	0,000224(7)	0,000224(7)
$\gamma_{2,0}(\text{Zn})$	1655,87(14)			
$\gamma_{2,1}(\text{Zn})$	578,52(13)	0,0335(17)	0,00115(4)	0,00129(5)
$\gamma_{3,0}(\text{Zn})$	1883,19(6)	0,137(4)	0,000073(3)	0,000084(4)
$\gamma_{3,1}(\text{Zn})$	805,84(8)	0,094(3)	0,000423(17)	0,00047(2)
$\gamma_{3,2}(\text{Zn})$	227,31(15)	0,00012(5)	0,0268(8)	0,0295(9)
$\gamma_{4,0}(\text{Zn})$	2338,48(8)	0,00113(15)	0,000047(2)	0,000057(3)
$\gamma_{4,1}(\text{Zn})$	1261,09(9)	0,094(3)	0,000144(6)	0,000160(8)
$\gamma_{4,2}(\text{Zn})$	682,57(16)	0,000312(19)	0,000715(22)	0,000803(25)
$\gamma_{5,0}(\text{Zn})$	2821,79(14)	0,00047(40)	0,000034(2)	0,000044(3)
$\gamma_{5,1}(\text{Zn})$	1744,44(13)	0,0095(5)	0,000078(3)	0,000086(4)
$\gamma_{5,2}(\text{Zn})$	1165,93(15)	0,000016(10)	0,000185(6)	0,000209(7)
$\gamma_{5,3}(\text{Zn})$	938,62(20)	0,000177(17)	0,000275(9)	0,000304(9)
$\gamma_{5,4}(\text{Zn})$	483,35(16)	0,00026(3)	0,0016(2)	0,0017(2)
Constantes Atômicas				
ω_K	0,486(4)			
$\bar{\omega}_L$	0,0108(4)			
Elétron Auger				
KLL	7,21– 7,55	100		
KLX	8,31– 8,63	28,3		
KXY	9,39– 9,65	2,01		
L	0,732– 0,997			

4.4 Extrapolação Multiparamétrica da Eficiência Aplicada ao ^{68}Ga

No caso do ^{68}Ga para a determinação da atividade, onde ocorre a emissão de pósitrons e de captura eletrônica que competem entre si, foi necessária a aplicação do método de extrapolação multiparamétrico [20,21].

Para obtenção das equações que regem o método foi utilizado um esquema decaimento simplificado apresentado na figura 9 [21]:

Figura 10- Esquema de decaimento do ^{68}Ga simplificado

Onde a_1 e a_2 são as probabilidade de decaimento dos ramos β_1^+ e β_2^+ respectivamente e b_1 e b_2 são as probabilidade de decaimento dos ramos de captura eletrônica CE_1 e CE_2 , γ_n é o fóton de 1077,35 keV e $\gamma_{\pm}$ o fóton de aniquilação de 511 keV.

Considerando que o coeficiente de conversão interna para o fóton de 1077,35 keV, seja aproximadamente zero $\alpha_{1077} \approx 0$ e $\varepsilon_{\beta\gamma} \neq 0$ a contagem N_{β} pode ser obtida da seguinte forma :

$$N_{4\pi} = N_0 \left\{ \left[a_1 \varepsilon_{\beta_1} + a_2 \varepsilon_{\beta_2} + b_1 \varepsilon_{CE_1} + b_2 \varepsilon_{CE_2} \right] + \left[a_1 (1 - \varepsilon_{\beta_1}) 2\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}} + a_2 (1 - \varepsilon_{\beta_2}) 2\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}} \right] + \left[b_1 (1 - \varepsilon_{CE_1}) \varepsilon_{\beta_{\gamma 1077,35}} + a_1 (1 - \varepsilon_{\beta_1}) \varepsilon_{\beta_{\gamma 1077,35}} \right] \right\} \quad (30)$$

Para a janela γ em 511 keV observa-se as seguintes equações :

$$N_{\gamma 511} = N_0 [a_1 2\varepsilon_{\gamma 511} + a_2 2\varepsilon_{\gamma 511}] \quad (31)$$

Colocando $2\varepsilon_{\gamma 511}$ em evidência na equação (31), chega-se na equação (32)

$$N_{\gamma 511} = N_0 [(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\gamma 511}] \quad (32)$$

A contagem de coincidência para janela de 511 keV pode ser representada pela equação abaixo :

$$N_C = N_0 [a_1 \varepsilon_{\beta_1} 2\varepsilon_{\gamma 511} + a_2 \varepsilon_{\beta_2} 2\varepsilon_{\gamma 511}] \quad (33)$$

Considerando $\varepsilon_{\beta 1} = \varepsilon_{\beta 2} = \varepsilon_{\beta}$ o parâmetro de eficiência será :

$$\frac{N_C}{N_{\gamma 511}} = \frac{[(a_1 + a_2) \varepsilon_{\beta} 2\varepsilon_{\gamma 511}]}{[(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\gamma 511}]} \quad (34)$$

Que corresponde a:

$$\frac{N_C}{N_{\gamma 511}} = \varepsilon_\beta = \varepsilon_1 \quad (35)$$

Para a janela γ em 1077,35 keV tem-se:

$$N_{\gamma 1077,35} = N_0 [a_1 \varepsilon_{\gamma 1077,35} + b_1 \varepsilon_{\gamma 1077,35}] \quad (36)$$

Colocando $\varepsilon_{\gamma 1077}$ em evidência na equação (36), chega-se na equação (37).

$$N_{\gamma 1077,35} = N_0 [(a_1 + b_1) \varepsilon_{\gamma 1077,35}] \quad (37)$$

A contagem de coincidência para janela de 1077,35 pode ser representada por :

$$N_C = N_0 [a_1 \varepsilon_\beta \varepsilon_{\gamma 1077,35} + b_1 \varepsilon_{CE1} \varepsilon_{\gamma 1077,35}] \quad (38)$$

Colocando $\varepsilon_{\gamma 1077}$ em evidência na equação (38), chega-se na equação (39).

$$N_C = N_0 [a_1 \varepsilon_\beta + b_1 \varepsilon_{CE1}] \varepsilon_{\gamma 1077,35} \quad (39)$$

Considerando $\varepsilon_{CE1} = \varepsilon_{CE2} = \varepsilon_{CE}$ o parâmetro de eficiência será :

$$\frac{N_C}{N_{\gamma 1077,35}} = \frac{[a_1 \varepsilon_\beta + b_1 \varepsilon_{CE}]}{(a_1 + b_1)} = \varepsilon_2 \quad (40)$$

Levando em conta que $\varepsilon_\beta = \varepsilon_1$ e isolando ε_{CE} na equação(40) obtém-se:

$$\varepsilon_{CE} = \frac{\varepsilon_2(a_1 + b_1) - a_1 \varepsilon_1}{b_1} \quad (41)$$

Substitui-se na equação (41) nas respectivas variáveis da equação (30) e faz um rearranjo das variáveis obtidas chega-se na equação (42):

$$N_{4\pi} = N_0 \left\{ \left[(a_1 + a_2) \varepsilon_1 - \frac{(b_1 + b_2)}{b_1} a_1 \varepsilon_1 + \left[\frac{(b_1 + b_2)}{b_1} (a_1 + b_1) \right] \varepsilon_2 \right] + [(a_1 + a_2)(1 - \varepsilon_1) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511}] + \right. \\ \left. \left[b_1 \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} - b_1 \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \left(\frac{\varepsilon_2 (a_1 + b_1)}{b_1} \right) + a_1 \varepsilon_1 \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} + a_1 (1 - \varepsilon_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \right] \right\} \quad (42)$$

Dividindo a equação (42) por $\varepsilon_1 \varepsilon_2$ e fazendo um novo rearranjo das variáveis chega-se na equação (43):

$$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} = N_0 \left\{ \left[\left[(a_1 + a_2) - \frac{(b_1 + b_2)}{b_1} a_1 \right] \frac{1}{\varepsilon_2} + \left[\frac{(b_1 + b_2)}{b_1} (a_1 + b_1) \right] \frac{1}{\varepsilon_1} \right] + [(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} \left(\frac{1}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_2} \right)] + \right. \\ \left. \left[(a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \left(\frac{1}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1} \right) \right] \right\} \quad (43)$$

como $\left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) = \left(\frac{1}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1} - \frac{1}{\varepsilon_2} + 1 \right)$ pode-se somar e subtrair os seguintes termos na equação (43) :

$$\left\{ (a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511}; (a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} \frac{1}{\varepsilon_1}; (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35}; (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \frac{1}{\varepsilon_2} \right\}$$

E ao reagrupar os termos obtêm-se :

$$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} = N_0 \left\{ \left[\overbrace{\left[(a_1 + a_2) - \frac{(b_1 + b_2)}{b_1} a_1 \right]}^A \frac{1}{\varepsilon_2} + \overbrace{\left[\frac{(b_1 + b_2)}{b_1} (a_1 + b_1) \right]}^B \frac{1}{\varepsilon_1} \right] + \right. \\ \left. \overbrace{\left[(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} + (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \right]}^C \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + \right. \\ \left. \left[(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) \right] \right\} \quad (44)$$

Combinando os termos comuns somando e subtraindo A e B

$$\begin{aligned}
 \frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} = N_0 \left\{ \overbrace{\left[\left(a_1 + a_2 \right) - \frac{(b_1 + b_2)}{b_1} a_1 + (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \right]}^A \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) + \right. \\
 \left. \overbrace{\left[\frac{(b_1 + b_2)}{b_1} (a_1 + b_1) (a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} + \right]}^B \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + \right. \\
 \left. \overbrace{\left[(a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} + (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \right]}^C \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + \right. \\
 \left. (a_1 + a_2) 2\varepsilon_{\beta\gamma 511} \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) + (a_1 + b_1) \varepsilon_{\beta\gamma 1077,35} \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) + A + B \right\}
 \end{aligned} \tag{45}$$

Considerando $A+B=1$, que é $a_1+a_2+b_1+b_2$ chega-se na equação multiparamétrica para a curva de extrapolação da atividade do ^{68}Ga :

$$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 \varepsilon_2} = N_0 \left\{ A \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) + B \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + C \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right) \left(\frac{1}{\varepsilon_1} - 1 \right) + 1 \right\} \tag{46}$$

4.5 Detectores de radiação

É possível identificar e medir a radiação ionizante, desde que ela possa interagir com um meio absorvedor sensível, um dispositivo com essa característica será denominado de detector. Quantificando as transformações ocorridas no meio detector é possível de forma indireta medir a radiação incidente^[6,11].

Ao interagir com o meio sensível a radiação promove transformações químicas ou físicas no próprio meio detector e produz sinais luminosos ou elétricos .

Selecionar um detector adequado à necessidade para medir uma radiação específica, exige um conhecimento do tipo de radiação a ser medida, das características de respostas do detector a esse tipo de radiação e saber o comportamento do detector como repetitividade, reprodutibilidade, estabilidade, eficiência resolução em energia, exatidão e precisão. Normalmente um bom detector irá preencher em maior ou menor grau todas as características aqui citada^[11].

4.5.1 Detectores Envolvidos No Sistema de Coincidências $4\pi\beta-\gamma$

O sistema I que será usado para medir as radiações da fonte radioativa, do presente trabalho, é composto por um detector proporcional a gás em geometria 4π , que irá contar a via de pósitron (β^+), e para contar a via gama(γ) o sistema possui dois detectores, pode-se escolher entre o detector cintilador NaI(Tl) ou o detector semicondutor HPGe, sendo escolhido este último por possuir uma melhor resolução para gama, mesmo com sinais de baixa intensidade, como é o caso do gama de 1077,35 keV, e está também é a razão da escolha do sistema I.

4.5.1.1 Detector Proporcional a Gás

Um detector a gás possui uma câmara preenchida com uma mistura de um gás nobre e outro gás que auxiliará na melhora da eficiência do detector. No meio da câmara de gás existe um fio polarizado positivamente (ânodo) e a carcaça da câmara é polarizada negativamente (cátodo), essas duas regiões são denominadas de eletrodos do detector. Aplica-se uma tensão aos eletrodos de tal forma que a radiação ao interagir com o gás provoque ionização de algumas moléculas do gás, e os íons formados quando atraídos para os eletrodos geram uma corrente elétrica. Dependendo da faixa de tensão aplicada aos eletrodos, os íons serão mais intensamente atraídos, o que provocará novas colisões entre os íons formados inicialmente e as moléculas do gás, isso produzirá íons secundários. A quantidade de íons secundários é proporcional à energia da radiação incidente e, portanto o sinal elétrico gerado será proporcional à energia da radiação incidente conforme mostra o gráfico da amplitude de pulso em função da tensão aplicada que esta ilustrado na figura 11.

Figura 11- As diferentes regiões de operação dos detectores a gás ^[6]

A geometria interna desse tipo de detector é de grande importância. Os detectores em geometria 2π e 4π são os mais apropriados para o uso em metrologia das radiações. Conforme as ilustrações apresentadas na figura 12 percebe-se que os detectores 4π , além disso, possuem uma boa vantagem em relação aos de 2π , pois a fonte fica totalmente inserida dentro do volume sensível, o que permite uma eficiência de contagem próxima de 100% para elétrons, pósitrons e partículas alfa de alta energia.

Figura 12 - Esquema dos contadores proporcionais em geometria 2π e 4π ^[9]

4.5.1.2 Detector Proporcional 4π do LMN

Os detectores proporcionais dos sistemas do LMN possuem geometria 4π , bom isolamento da radiação externa, baixa sensibilidade para a detecção da radiação γ (menor que 1%), tempo morto da ordem de 100ns, alta eficiência para a detecção β e pósitrons de alta energia, entre 90 % e 100%^[9]. A figura 13 apresenta vista em corte transversal do detector proporcional do LMN.

Figura 13– Vista em corte transversal do detector proporcional do LMN ^[5]

O gás utilizado no interior do detector é de alta pureza, sendo constituído de 90% de argônio e 10% de metano, conhecido como mistura P10. No sistema I, o gás usado para detector proporcional pode ser pressurizado e sua pressão pode variar entre 0,1 e 1,0 MPa.

4.5.1.3 Detectores Semicondutores de HPGe

Um detector semicondutor de HPGe é utilizado basicamente para detectar radiação γ , sendo composto por um monocristal de germânio que é um material semicondutor. No interior desse cristal é aplicada alta tensão que faz gerar um campo elétrico da ordem de 500 V/cm.

Um semicondutor é composto por três regiões ou bandas distintas caracterizadas pela presença de elétrons. Essas bandas são: banda de valência, banda proibida e banda de condução, conforme é esquematizado na figura 14.

Figura 14 – Representação esquemática das bandas de um detector semicondutor HPGe

Na banda de valência os elétrons estão presos em suas posições no cristal semicondutor, e na de condução eles podem movimentar-se livremente e entre a banda de condução e a de valência tem-se a banda proibida, que no caso dos semicondutores tem uma diferença de energia de aproximadamente 1eV.

Para passar um elétron da banda de valência para a de condução, ele deve ganhar em uma única interação, uma quantidade de energia maior do que a energia necessária para a mudança de banda.

Esse processo poderia ocorrer por agitação térmica, porém os resultados seriam maiores do que se fosse um fóton que causasse o processo, e isso metrologicamente, é algo indesejável para evitar isso, o cristal é resfriado com nitrogênio líquido a 77K.

Eliminado o efeito indesejável da temperatura, quando uma radiação γ incidir no detector HPGe, acontecerá uma transferência de elétrons do cristal para a banda de condução, levando outros elétrons em sua volta com eles, indo da

banda de valência para a banda de condução, deixando buracos na banda de valência, que também são chamados de portadores de cargas positivas ^[22].

Com o campo elétrico existente há um recolhimento dos elétrons para o polo positivo, com energia proporcional ao fóton incidente, e no outro polo são recolhidos os portadores de cargas positivas, de tal forma a evitar recombinação de elétron-buraco no semicondutor e oferecer rapidez no recolhimento de cargas ($\sim 0,3\mu\text{s}$)^[22].

O detector semicondutor de HPGe utilizado no sistema I do LMN é da marca INTERTECHNIQUE - tipo EGC 20, coaxial com diâmetro 51,2 mm e área sensível de $20,6\text{ cm}^2$, com comprimento de 50,2 mm e volume sensível de $99,7\text{ cm}^3$ e a tensão de operação de 3.000 volts (negativos)^[21,23].

4.6 Sistemas de Coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ do LMN do IPEN e os Arranjos Eletrônicos

O LMN do IPEN possui dois sistemas de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$, onde cada um deles possui um detector proporcional em geometria 4π , sendo um só a gás fluente (Sistema II) e outro que pode ser a gás fluente ou pressurizado (Sistema I).

No Sistema I a detecção γ é realizada com um cristal de NaI(Tl) e um detector semicondutor de HPGe, enquanto que no Sistema II são utilizados dois cintiladores NaI(Tl). O sistema I é o que foi utilizado na obtenção de dados desse trabalho (figura 15). Cada um dos dois sistemas são protegidos externamente com paredes formadas por anéis de chumbo para a blindagem da radiação de fundo (*background* – BG).

Figura 15 - Detectores de radiação do sistema I do LMN

O arranjo eletrônico utilizado para o sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$ irá depender das características do radionuclídeo a ser estudado e de como será processado os dados a fim de adquirir a curva de extrapolação do método de coincidências. Ele consiste no uso de equipamentos (módulos eletrônicos) que podem amplificar, ajustar e registrar os pulsos de energia para a obtenção da coincidência.

Atualmente o LMN trabalha com três tipos de arranjos eletrônicos no sistema de coincidência, sendo um deles o de coincidência convencional (sistema eletrônico convencional) e os outros dois são arranjos alternativos desenvolvidos no próprio LMN, que são o arranjo eletrônico de coincidência com o uso do

módulo TAC(*Time to Amplitude Converter*) e o arranjo eletrônico de coincidência por software (SCS).

4.6.1 Sistema Eletrônico Convencional

O sistema eletrônico convencional, assim como os demais sistemas, tem uma base comum, composta por detectores de radiação para a coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ que irão fornecer as contagens das vias β e γ , além dos pré-amplificadores e dos amplificadores dessas duas vias.

No sistema convencional, existem três vias distintas: β , γ e uma via de coincidência. Os detectores são conectados em módulos eletrônicos para melhorar, discriminar e ajustar os sinais de suas vias. O diagrama de blocos desse sistema é mostrado na figura 16.

Figura 16 - Diagrama de blocos do sistema convencional de coincidência

Como pode ser observado no diagrama de blocos do Sistema II (figura 16), os pulsos provenientes do detector proporcional 4π (via β) e dos detectores γ são pré-amplificados e amplificados.

Os pulsos dos detectores γ são somados para melhorar o sinal. Os pulsos das vias β e γ são conectados em um discriminador (analisador monocanal) para selecionar os pulsos dentro de uma faixa de amplitude de pulso de interesse, excluindo assim, a faixa de ruído eletrônico, ou seja os pulsos de baixa amplitude.

Os pulsos de interesse são enviados ao módulo de porta e atraso para sincronizar os tempos das vias β e γ , que possuem diferentes tempos de formação dos pulsos de detecção, garantindo um perfeito funcionamento do módulo de coincidência ^[3].

O módulo de coincidência vai registrar as coincidências entre β e γ , desde que os pulsos estejam dentro de um tempo pré-estabelecido (tempo de resolução).

Com os pulsos de cada via e os de coincidências ajustados, serão então, contados por contadores que tem um cronômetro digital comum, permitindo um sincronismo nos sinais adquiridos ^[11].

É importante perceber que esse sistema eletrônico exige muito ajuste em cada módulo, do contrário poderá haver falha na obtenção dos dados de coincidência e esses dados nesse sistema não poderão ser reajustados para possíveis acertos posteriores.

4.6.2. Sistema Eletrônico Time to Amplitude Converter (TAC)

Este sistema é considerado alternativo, pois foi desenvolvido pelo LMN.

Para registrar as contagens que serão analisadas por um módulo analisador multicanal - *Mult Channel Analyzer* (MCA) que está inserido em um computador, o sistema segue os mesmos caminhos do sistema convencional até o ponto aonde as vias β e γ são discriminadas por um analisador monocanal - *Simple Channel Analyzer* (SCA), conforme está descrito no diagrama de blocos da figura 17.

Figura 17 - Diagrama de blocos do arranjo eletrônico do sistema TAC

Os pulsos da via β e γ ao saírem do discriminador são sincronizados pelo módulo atrasador e pelos geradores de porta e atraso, e em seguida cada uma dessas duas vias são conectadas a entrada (start) e a saída (stop) do módulo TAC (Time Amplitude Converter), ou seja, tanto a entrada quanto a saída recebem os sinais das vias β e γ .

Quando um pulso de qualquer via acontecer, irá acionar o início (start) que só será desligado se surgir um novo pulso (stop), se o start e o stop estiver dentro de um tempo pré-estabelecido, será contado como coincidente.

No analisador multicanal (MCA), como mostra a figura 18, serão registradas as contagens provenientes do TAC em função do intervalo de tempo estabelecido.

Figura 18 - Espectro de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ obtido pelo sistema eletrônico TAC

4.6.3. Sistema de Coincidência por Software(SCS)

O sistema eletrônico de coincidência por *software* (SCS) desenvolvido pelo LMN foi produzido para atender as atividades de pesquisa do LMN – IPEN, por isso trata-se também de um sistema alternativo, tem características similares aos dos sistemas *Digital Coincidence Counting (DCC)* ^[24] e o *Software Coincidence Counting(SCC)* ^[25] apresentados com maior clareza por Toledo ^[11].

O sistema SCS apresenta um desempenho compatível com a instrumentação eletrônica do LMN na aquisição de dados, com uma taxa de amostragem do sistema de aquisição de 2,5 MS/s (2,5 milhões de amostragens por segundo) por canal, que é inferior ao sistema DCC que possui uma taxa de 20 MS/s, porém é superior ao SCC que possui uma taxa de 50KS/s, porém. O diagrama em blocos do SCS é apresentado figura 19.

Figura 19 - Sistema de coincidência por software^[7]

Conforme mostra o diagrama de blocos da figura 19, os dados analógicos das vias gama e betas provenientes dos detectores de radiação do sistema seguem de forma independente, o caminho mais básico, sendo apenas pré-amplificados e amplificados.

Os pulsos são então digitalizados e recolhidos por uma placa de aquisição de dados (PCI-6132), e são registrados por um software de aquisição (LabVIEW versão 8.5) em arquivos de dados que contém as informações de cada pulso, altura e instante de ocorrência, para posteriormente serem

analisados por um software em linguagem FORTRAN denominado SCTAC 6.0, especialmente desenvolvido pelo LMN para determinar a atividade da fonte radioativa.

Tanto no sistema convencional quanto no sistema TAC, eram necessários vários módulos eletrônicos, exigindo ajustes precisos de hardware para cada tipo de medida, entretanto, o SCS tem uma grande vantagem de que todo ajuste pode ser efetuado na análise dos dados, utilizando-se para isso um software, especialmente desenvolvido para esse fim (SCTAC 6.0), sendo que os resultados podem ser refeitos e ou aprimorados sem a necessidade de serem feitas novas medidas, o que economiza tempo, material.

4.6.4 Arranjo eletrônico do sistema de coincidência por software (SCS)

Conforme se observa na figura 20, a partir do painel de conexão, o arranjo eletrônico do SCS deixa de ser semelhante aos outros arranjos, por isso que a partir deste ponto há a necessidade de ser feita uma breve descrição dos componentes mais importantes desse sistema :

Figura 20 – Sistema de aquisição de dados da fonte radioativa para o computador ^[7]

- **Painel de Conexão e Cabo de Dados**

A conexão entre os amplificadores de espectroscopia, que trazem os sinais analógicos de cada via, e a placa de aquisição de dados é feita por meio do painel de conexão BNC-2110 ^[11].

O cabo SH-68-EP interconecta o painel de conexão na entrada da placa PCI6132 e é especialmente fabricado com pares de fios individualmente trançados, para que haja redução de indução cruzada (*crosstalk*), normalmente verificada em sinais de alta velocidade, em cabos com comprimento acima de 2 metros ^[11].

Figura 21 - Painel de conexão e cabo de dados ^[11]

- **Placa de Aquisição**

A placa de aquisição de dados PCI6132 ^[26] desenvolvida pela *National Instruments* (NI), efetua a aquisição simultânea de dados em até quatro canais individuais, com quatro conversores A/D (analógico/digital), a uma taxa de conversão de até 2,5 MS/s (*Mega samples per second* – milhões de amostragens por segundo) e o registro é executado no computador pelo software LabVIEW versão 8.5^[11] em blocos de 1 segundo, tempo total de aquisição corresponde ao tempo necessário para que o sistema digitalize o número de segundos selecionados no painel frontal^[11].

Figura 22 – Placa de aquisição de dados PCI-6132^[29]

A placa PCI6132 é instalada em um microcomputador com processador Pentium 4, de 2,8 GHz e 1 GB de memória RAM, funcionando no ambiente operacional Microsoft Windows XP Professional e as informações de cada pulso são registradas e armazenadas em arquivos deste PC.

4.7 Preparação das fontes

A solução de $^{68}\text{GaCl}_3$ (cloreto de gálio 68) foi obtida por meio de um gerador de $(\text{Ge} - \text{Ga})^{68}$ fornecido pelo Centro de Radiofármacos do IPEN, seguida por eluição com uma solução salina fisiológica. Após este procedimento, a solução radioativa foi diluída em água destilada para que na preparação das fontes os valores de medida de suas respectivas atividades fossem adequados ao sistema de medida. Conforme ilustrado de forma desproporcional na figura 23, as fontes radioativas, foram preparadas gotejando alíquotas conhecidas da solução em substratos de collodion (nitrato de celulose) bem finos, com densidade superficial de 10 a 20 $\mu\text{g cm}^{-2}$ metalizados com Au (densidade superficial de 10 $\mu\text{g cm}^{-2}$) para torná-los condutores, melhorando assim o campo elétrico e a eficiência de detecção, eles são montados sobre arandelas de aço inoxidável com 0,2 mm de espessura, diâmetro interno vazado de 2 cm e externo de 4 cm feitas para atenuar a auto-absorção dos pósitrons.

As massas das fontes foram determinados pela técnica do picnômetro. Um agente antiestático (Cyastat SM) foi depositado para diminuir a tensão superficial da gota da solução melhorando a uniformidade do material radioativo. As fontes foram secas cuidadosamente sob uma lâmpada infravermelha. Um total de quatro fontes foram preparadas para a medição 1, e seis fontes para a medição 2, com massas variando entre 15 mg e 40 mg para as duas medições.

Figura 23- Arandela de aço inoxidável com filme de Collodion metalizado com ouro contendo a solução radioativa de ^{68}Ga [7]

4.8 Software Para a Análise

O SCS utiliza como software de análise um programa desenvolvido em linguagem FORTRAN denominado SCTAC 6.0 que utiliza informações relacionadas a fonte ^[11] como:

- Data e hora de referência
- Tempo de medida
- Massa e incerteza da massa

Além das informações da fonte, o software aplicará correções importantes em algumas medidas:

- Correções para a radiação de fundo (BG)
- Correção para tempo morto
- Correção o para o decaimento da fonte
- Correção para as coincidências acidentais

4.8-1. Aplicação do Software de Análise com o Emprego da Equação Multiparamétrica na Obtenção da Atividade da Fonte .

Como os dados utilizados para determinar a atividade radioativa estarão sempre disponíveis em arquivos a serem processados, o usuário poderá escolher a faixa de dados, tanto do espectro da via de pósitron (figura 24) quanto da via de gama (figura 25), a serem trabalhados conforme a necessidade.

Figura 24 – Faixa de valores de pósitron típica do SCTAC 6,0 escolhida pelo usuário

Figura 25 – Janelas gama típica do SCTAC 6,0 que podem ser escolhidas pelo usuário

O usuário também poderá escolher quantos pontos de atividade da fonte serão calculados dentro da faixa de dados escolhida, ou seja, poderá discriminar a atividade por software, sem a necessidade do uso de absorvedores.

Tratando as informações da fonte, as correções a serem aplicadas, e a escolha da faixa de dados como sendo elementos individuais separados, o programa irá combinar e ajustar os elementos para calcular a atividade da fonte.

De forma semelhante ao que acontece no sistema TAC, o programa utiliza os dados dentro da faixa de valores escolhidos para criar um espectro de tempo como acontece no analisador multicanal (MCA), sendo o pico mais à esquerda proveniente de contagem $\beta\text{--}\beta$, o pico mais à direita de contagem $\gamma\text{--}\gamma$ e na faixa entre os dois pulsos ficará o espectro de coincidência $\beta\text{--}\gamma$ como é apresentado na figura 26^[27].

Figura 26 - Espectro de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ obtido pelo sistema eletrônico SCTAC 6.0

A mesma faixa de dados escolhidos poderá ser processada com diferentes parâmetros tanto para os pósitrons quanto para os gamas, obtendo diferentes valores de atividade da fonte.

A tabela 3 apresenta um exemplo dos valores das atividades obtidas para uma faixa de pósitrons presentes entre os canais 10 a 120 usando uma janela gama de 511 keV e outra de 1077,35 keV.

Tabela 3 – Atividade da fonte com ineficiência para as janelas gama de 511 keV e 1077,35 keV

511 keV				1077,35 keV			
canal	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$ (cps.g ⁻¹)	σ (%)	canal	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$ (cps.g ⁻¹)	σ (%)
10	0,0329	744920	0,436	10	1,0577	1484079	5,559
19	0,0423	741795	0,442	19	1,0944	1490521	5,636
29	0,0769	736151	0,462	29	1,1478	1468226	5,745
39	0,1391	727913	0,497	39	1,2724	1452136	5,987
49	0,2223	715587	0,537	49	1,3253	1361299	6,087
59	0,3324	705185	0,584	59	1,3709	1254850	6,171
69	0,4697	698337	0,635	69	1,5225	1198636	6,436
79	0,6297	693204	0,687	79	1,7842	1184281	6,857
89	0,8118	688987	0,739	89	2,2615	1240309	7,536
99	1,0353	692886	0,795	99	2,4702	1181377	7,808
109	1,2698	693384	0,848	109	2,8284	1169540	8,245
119	1,5341	696862	0,901	119	3,2690	1173963	8,741

A partir dos dados obtidos e processados para cada fonte, será possível aplicar a equação multiparamétrica para obter a padronização da fonte. A tabela 4 mostra a aplicação para umas das fontes produzidas para a medição 1.

Tabela 4 - Apresenta os resultados para a padronização da fonte

Fonte	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$ (10 ⁶ cps.g ⁻¹)	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
14902	1,532905	0,436	0,0329	1,0577	0,03480
	1,553570	0,442	0,0423	1,0944	0,04629
	1,581133	0,462	0,0769	1,1478	0,08827
	1,654128	0,497	0,1391	1,2724	0,17699
	1,663916	0,537	0,2223	1,3253	0,29461
	1,671962	0,584	0,3324	1,3709	0,45569
	1,761635	0,635	0,4697	1,5225	0,71512
	1,930023	0,687	0,6297	1,7842	1,12351
	2,247192	0,739	0,8118	2,2615	1,83589
	2,404457	0,795	1,0353	2,4702	2,55740
	2,654622	0,848	1,2698	2,8284	3,59150
	2,974940	0,901	1,5341	3,2690	5,01497

Com uma projeção linear dos parâmetros contidos na tabela 4, emprega-se uma matriz de covariância para descobrir as incertezas, obtendo uma matriz com os parâmetros contendo a atividade da fonte e respectivas incertezas em cada parâmetro.

4.9 Método de Monte Carlo

Quando um problema físico ou matemático complexo for de difícil solução analítica, pode-se através de um software simular o problema e em seguida aplicar o Método de Monte Carlo (MMC). Trata-se de um método numérico que ao ser processado e repetido varias vezes permite resolver problemas físicos e matemáticos, desde que o evento em questão seja aleatório e que cada repetição seja independente uma da outra.

O MMC tem 1949 como suposto ano de nascimento, com a publicação de um artigo intitulado “*The Monte Carlo Methods*”, esse nome foi dado em homenagem a cidade de Monte Carlo, que possui muitos cassinos, e portanto, trabalha com jogos de azar que envolvem processos aleatórios da mesma maneira que o MMC^[28]

Os responsáveis pela criação e grande utilização do MMC na física e na engenharia foram os norte americanos J. Von Newman e S. Ulam, pois este método evitava o uso de sofisticados fundamentos teóricos de mecânica estatística.

Em muitos problemas matemáticos que não tem a menor relação com questões aleatórias, pode-se inventar um modelo probabilístico artificial que permita resolvê-los de forma eficiente por meio desse método, por isso ele é considerado um método universal na solução de problemas matemáticos^[28].

Há muito tempo que se faz o uso do método para simular e solucionar problemas que envolvam transporte de partículas radioativas, especialmente para nêutron e fótons^[9].

Um ponto importante que é preciso ser analisado sobre o método é entender como ele pode ser preparado para processar os dados, ou seja, que parâmetros o programa levará em consideração, e como poderá adaptar-se a um problema físico ou matemático para que o método apresente uma solução válida do problema.

4.9.1 Aplicação do MMC ao Método de Coincidência $4\pi\beta-\gamma$ do LMN^[9]

Neste trabalho foi aplicada a técnica de simulação de Monte Carlo para o sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, usado por meio do programa Esquema versão 09.

As taxas de contagens nas vias beta, gama e de coincidência observadas pela técnica da extrapolação da eficiência na medida de atividade foram simuladas por meio do MMC. As tabelas de energias depositadas, as eficiências para fótons e elétrons e pósitrons foram obtidas pelo programa MCNPX que é um programa MMC consagrado na simulação do transporte de radiação para nêutron, elétron e fóton. ^[28]

Para simular todo o processo de detecção e calcular os espectros de energia depositada, o programa MCNPX^[8] usa dois tipos de arquivos de dados de entrada, sendo que o primeiro oferece especificações da fonte radioativa, e o segundo oferece especificações dos tipos de superfícies e definição de células para a geometria do sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ do LMN, usando para isso, o programa VISED (abreviação de **VI**Sed **ED**itor Computer), que é um programa que possui uma interface gráfica que permite a criação e edição do arquivo de entrada do MCNPX, contendo todas as informações sobre a geometria e materiais do sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ que está sendo simulado.

Ele permite também observar graficamente, a trajetória das partículas que estão sendo transportadas, auxiliando na interpretação dos resultados e na criação de um modelo geométrico para o sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$.

4.9.2. VISED para o Sistema I

A figura 27 representa a geometria do arranjo experimental do sistema I apresentada pelo programa VISED. No centro da figura a cor verde, representa o volume interno do proporcional 4π (PC), aonde estão contidos a fonte radioativa e o gás P-10; o corpo em latão do detector proporcional 4π (PC) está em laranja; o detector cintilador de NaI(Tl) está em amarelo; as armaduras de chumbo para a blindagem está em azul marinho; o ar está representado em branco ; o azul celeste representada o detector semiconductor de HPGe.

Figura 27-Geometria do arranjo experimental para o sistema I, considerada na simulação obtida através do código VISED.

4.9.3 Arquivos de Entrada

Com as informações das principais características do Sistema I, o programa MCNPX, calcula a energia beta depositada e a eficiência para elétrons monoenergéticos dentro das faixas de valores aceitas e adaptadas ao detector 4π , criando assim um vetor de energias que vai de 0 MeV a 4 MeV com seus subintervalos e uma tabela normalizada de eficiências para elétrons em função dessas energias. Esses dados ficam dispostos no arquivo de entrada EFIBETA.DAT para o programa Esquema versão 9.0.

Seguindo essa mesma linha, o programa MCNPX calcula a energia gama depositada e a eficiência para fótons dentro das faixas de valores aceitas e adaptadas ao detectores NaI(Tl) e HPGe, criando assim um vetor de energias que vai de 0 MeV a 3 MeV com seus subintervalos e uma tabela normalizada de eficiências para fótons em função dessas energias para cada detector. Esses dados ficam dispostos no arquivo de entrada EFIGAMA.DAT. Com os dados também é criada uma tabela de eficiência total em função da energia disposta no arquivo de entrada EFIGAMAT.DAT.

Num outro arquivo de entrada do programa Esquema, chamado ESQUEMA.DAT estarão as informações do radionuclídeo como número atômico, números de níveis de energia do esquema de decaimento a serem populados, energia de desintegração, intensidades normalizadas dos ramos β , intensidades normalizadas nos ramos γ , matriz dos coeficientes de conversão interna total e da camada K.

As informações como números de canais do multicanal; números de histórias (eventos); espessura mínima e máxima dos absorvedores; números de absorvedores; resolução em energia do detector gama (γ); raio da arandela da fonte e energia de discriminação da via beta (β), é especificada no arquivo CONSTANT.DAT

Os intervalos de energia gama que formarão os eventos coincidentes com as partículas beta (β) estão registrados no arquivo de entrada NPICOS.DAT.

4.9.4. Espectros de Póstron Pela Teoria de Fermi

Para que haja um espectro beta do radionuclídeo a ser estudado e que possa ser usado na simulação do sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ por meio do programa Esquema, usa-se a Teoria de Fermi para desintegração de beta ou de póstron ^[9]. O programa Esquema calcula o espectro beta para todas as energias dos ramos beta ou póstron do esquema de desintegração utilizando a Teoria de Fermi com os resultados obtidos constrói-se uma matriz que relaciona as probabilidades com as respectivas energias, ela está contida no arquivo FERMI.DAT. Um exemplo de espectro de póstron através da Teoria de Fermi é mostrado pela figura 28.

Figura 28 - Exemplo de espectro de póstron através da Teoria de Fermi

4.9.5. O Programa ESQUEMA

O programa ESQUEMA versão 9.0, simula todo o processo de desintegração radioativa do radionuclídeo considerado acompanhando todo o esquema de desintegração desde o núcleo pai até o núcleo filho, em seu estado fundamental, para tanto, o software promove algumas ações importantes como : reúne informações do transporte de radiação fornecidas pelo MCNPX do arranjo experimental do método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ do Sistema I, reúne informações do esquema de decaimento do radionuclídeo trabalhado e as características da fonte. O programa processa essas informações como se fosse uma simulação virtual do sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ contendo a fonte radioativa a ser trabalhada e repete tudo isso de forma independente e aleatória conforme ilustra o fluxograma da figura 29.

Figura 29 – Fluxograma do programa ESQUEMA versão 09 [9]

4.10. Aplicação do Método de Monte Carlo ao Presente Trabalho

Com os dados do arquivo de saída da simulação em Monte Carlo denominado NBGC.out, é possível aplicar a equação multiparamétrica e obter a matriz de parâmetros, que será utilizada para calcular os resultados da atividade da fonte em cada ponto discriminado e encontrar com isso o resultado da atividade extrapolada da fonte para depois comparar com os resultados experimentais .

Tabela 5 – Matriz dos parâmetros obtida por ajuste multiparamétrico dos dados da simulação de Monte Carlo

	N₀	A	B	C
Parâmetros	0,99064	0,04440	0,87512	-0,01957
Incerteza	0,00463	0,12089	0,00554	0,05775

5. RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 Medição 1

Os resultados a seguir foram calculados com discriminação eletrônica dos dados de algumas fontes de ^{68}Ga no sistema I, que serão denominados aqui de medição 1, usando como contador gama, o detector HPGe, as análises dos dados foram feitas pelo programa SCTAC versão 6.0 ^[11] com tempos de medidas das fontes variando de 2000 a 3000 segundos, e os resultados de $\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$ nas tabelas a seguir são dados em cps/g.

Tabela 6.1 -Resultados obtidos da fonte 1

Fonte 1	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1) * (1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$
1455072		0,66	0,0281	0,9271	0,02605
1507638		0,66	0,0404	1,0069	0,04068
1712898		0,67	0,0813	1,3012	0,10579
1971998		0,68	0,1525	1,6810	0,25636
2053407		0,70	0,2496	1,8304	0,45687
2140089		0,72	0,3693	1,9933	0,73612
2235108		0,73	0,5139	2,1593	1,10968
3232614		0,76	0,6853	3,5961	2,46443
3772712		0,78	0,8875	4,3654	3,87429
3553765		0,80	1,1103	4,0541	4,50129
3677430		0,83	1,3586	4,2217	5,73563
3944298		0,85	1,6221	4,6012	7,46353

Tabela 6.2 -Resultados obtidos da fonte 2

Fonte 2	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1) * (1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$
1532905		0,436	0,0329	1,0577	0,03480
1553570		0,442	0,0423	1,0944	0,04629
1581133		0,462	0,0769	1,1478	0,08827
1654128		0,497	0,1391	1,2724	0,17699
1663916		0,537	0,2223	1,3253	0,29461
1671962		0,584	0,3324	1,3709	0,45569
1761635		0,635	0,4697	1,5225	0,71512
1930023		0,687	0,6297	1,7842	1,12351
2247192		0,739	0,8118	2,2615	1,83589
2404457		0,795	1,0353	2,4702	2,55740
2654622		0,848	1,2698	2,8284	3,59150
2974940		0,901	1,5341	3,2690	5,01497

Tabela 6.3-Resultados obtidos da fonte 3

Fonte 3	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1220611		0,29	0,0277	0,6673	0,01848
1235532		0,30	0,0362	0,6922	0,02506
1254800		0,32	0,068	0,7290	0,04957
1,297166		0,34	0,1274	0,8076	0,10289
1323582		0,38	0,2129	0,8712	0,18548
1411646		0,42	0,3315	1,0127	0,33571
1536533		0,46	0,4732	1,2069	0,57111
1578442		0,51	0,6337	1,2880	0,81621
1726155		0,55	0,8198	1,5174	1,24396
1934382		0,59	1,0322	1,8269	1,88573
2069102		0,63	1,2663	2,0277	2,56768
2417589		0,67	1,5249	2,5320	3,86105

Tabela 6.4-Resultados obtidos da fonte 4

Fonte 4	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1838195		0,436	0,0202	1,5685	0,03168
1884208		0,442	0,0281	1,6481	0,04631
2195748		0,462	0,0581	2,1166	0,12297
2260795		0,497	0,1213	2,2396	0,27166
2525055		0,537	0,2109	2,6677	0,56263
2474779		0,584	0,3289	2,6396	0,86816
3036875		0,635	0,4764	3,4977	1,66631
3402531		0,687	0,6562	4,0466	2,65538
3774619		0,739	0,8552	4,6161	3,94770
4938491		0,795	1,0768	6,3610	6,84957
7493939		0,848	1,3248	10,1577	13,45695
11964952		0,901	1,5974	16,7567	26,76721

Com um ajuste multiparamétrico dos resultados da medição 1 consegue-se uma matriz dos parâmetros e suas respectivas incertezas.

Tabela 7-Matriz dos parâmetros obtidos por ajuste multiparamétrico de todas as fontes usadas para a medição 1

	N₀	A	B	C
Parâmetros	0,77822	-0,10532	0,67628	0,01471
Incertezas	0,00349	0,00798	0,00316	0,00355

Os resultados experimentais obtidos pela linearização dos parâmetros multiparamétricos foram produzidos com o uso da metodologia de matriz de covariância, e depois foram comparados com os resultados da simulação de Monte Carlo.

Tabela 8 - Comparação dos resultados experimentais com os resultados obtidos pelo Método de Monte Carlo

Método	Atividade
Experimental	(0,778 ± 0,003)MBq/g
Monte Carlo	(0,772 ± 0,003)MBq/g

5.2 Medição 2

A comparação entre a atividade obtida experimentalmente e a do método de Monte Carlo na medição 1 estão de acordo dentro da incerteza experimental. Para uma maior confiabilidade nos resultados obtidos foram feitas novas medidas em uma data posterior, tomando os mesmos procedimentos para a aquisição dos dados, no qual serão denominados de medição 2.

As tabelas a seguir mostram os resultados de seis fontes usadas para a medição 2, com tempo de medida das fontes variando de 2000 a 300 segundos, que serão linearizadas para obter a matriz da atividade e seus parâmetros e os resultados de $\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2}$ nas tabelas a seguir são dados em cps/g ..

Tabela 9.1 - Resultados obtidos da fonte 1

Fonte 1	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1938211		0,429	0,0169	1,0704	0,01809
1945304		0,432	0,0203	1,0817	0,02196
1943520		0,439	0,0281	1,0818	0,03040
1936929		0,448	0,0379	1,0818	0,04100
2009907		0,462	0,0533	1,1643	0,06206
2013080		0,478	0,0713	1,1767	0,08390
2010760		0,498	0,0962	1,1768	0,11321
2000057		0,518	0,1218	1,1769	0,14335
2035500		0,538	0,1500	1,2277	0,18416
2046751		0,560	0,1820	1,254	0,22823
2041923		0,586	0,2211	1,2542	0,27730
2112914		0,613	0,2659	1,3367	0,35543
2103425		0,637	0,3081	1,3369	0,41190
2116320		0,661	0,3528	1,3658	0,48185
2187837		0,685	0,4021	1,4568	0,58578
2190602		0,710	0,4541	1,4727	0,66875
2205570		0,733	0,5052	1,5051	0,76038
2311736		0,761	0,5709	1,6251	0,92777
2306443		0,787	0,6345	1,6252	1,03119
2303056		0,814	0,7042	1,6252	1,14447
2367941		0,840	0,7764	1,699	1,31910
2409161		0,869	0,8605	1,7375	1,49512
2470979		0,897	0,9478	1,7973	1,70348
2508656		0,924	1,0341	1,8387	1,90140
2600624		0,948	1,1145	1,9475	2,17049
2747054		0,973	1,2024	2,1147	2,54272
2893635		0,999	1,2969	2,2738	2,94889
3149546		1,027	1,4035	2,5454	3,57247
3247897		1,052	1,5059	2,646	3,98461
3303401		1,076	1,605	2,7163	4,35966

Tabela 9.2 -Resultados obtidos da fonte 2

Fonte 2	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1733985		0,540	0,0170	0,8658	0,01472
1730488		0,547	0,0216	0,8657	0,01870
1725865		0,558	0,0292	0,8657	0,02528
1769720		0,572	0,0393	0,9210	0,03620
1784723		0,593	0,0553	0,9401	0,05199
1777737		0,615	0,0728	0,9401	0,06844
1764618		0,635	0,0888	0,9400	0,08347
1814303		0,664	0,1143	0,9998	0,11428
1841553		0,691	0,1388	1,0417	0,14459
1833850		0,722	0,1691	1,0416	0,17613
1826945		0,753	0,2017	1,0415	0,21007
1910991		0,781	0,2325	1,1544	0,26840
1950540		0,816	0,2727	1,2031	0,32809
1941566		0,849	0,314	1,2029	0,37771
1996840		0,88	0,3548	1,2802	0,45421
2054494		0,911	0,3979	1,363	0,54234
2085106		0,939	0,4385	1,4216	0,62337
2104184		0,974	0,4918	1,4519	0,71404
2107376		1,012	0,5548	1,4516	0,80535
2109411		1,051	0,622	1,4514	0,90277
2109523		1,086	0,686	1,4512	0,99552
2164288		1,122	0,7563	1,5142	1,14519
2162277		1,157	0,8281	1,514	1,25374
2389221		1,197	0,9149	1,7632	1,61315
2549987		1,238	1,0066	1,929	1,94173
2557940		1,275	1,0965	1,9286	2,11471
2725973		1,309	1,182	2,1154	2,50040
2727045		1,343	1,2697	2,115	2,68542
2850617		1,372	1,3487	2,2713	3,06330
2850370		1,407	1,4452	2,2709	3,28190

Tabela 9.3 - Resultados obtidos da fonte 3

Fonte 3	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
4076120		0,688	0,0126	3,4254	0,04316
4073572		0,693	0,0156	3,4236	0,05341
4075000		0,703	0,0222	3,422	0,07597
4072757		0,718	0,0316	3,4202	0,10808
4069476		0,737	0,0445	3,4185	0,15212
4061151		0,762	0,0616	3,4165	0,21046
4417053		0,787	0,0797	3,8147	0,30403
4688615		0,816	0,1017	4,1212	0,41913
5003188		0,85	0,1287	4,4696	0,57524
4981065		0,883	0,1568	4,4649	0,70010
4955706		0,915	0,1862	4,4607	0,83058
4940612		0,953	0,2225	4,4565	0,99157
5293256		0,991	0,2612	4,8532	1,26766
5245769		1,024	0,2965	4,8484	1,43755
5631965		1,061	0,3376	5,3061	1,79134
6358660		1,099	0,3834	6,1484	2,35730
7325920		1,138	0,4337	7,2498	3,14424
7298999		1,178	0,4868	7,2403	3,52458
7318710		1,222	0,5511	7,2311	3,98506
7759995		1,271	0,6253	7,6687	4,79524
7806038		1,317	0,7017	7,6583	5,37383
8752721		1,36	0,7745	8,6996	6,73784
8760146		1,402	0,8511	8,6881	7,39444
8769618		1,444	0,9324	8,6755	8,08904
8746500		1,481	1,0064	8,6641	8,71955
8783064		1,524	1,0983	8,6521	9,50260
9355497		1,562	1,1826	9,2602	10,95111
10811426		1,608	1,2876	10,7567	13,85033
10838834		1,647	1,3841	10,7432	14,86966
10915109		1,694	1,5014	10,7313	16,11197

Tabela 9.4 - Resultados obtidos da fonte 4

Fonte 4	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1816487		0,351	0,0258	0,9397	0,02424
1833904		0,353	0,0278	0,9605	0,02670
1833636		0,36	0,0335	0,9605	0,03218
1827904		0,366	0,04	0,9606	0,03842
1822549		0,377	0,0504	0,9606	0,04841
1814866		0,391	0,0645	0,9607	0,06197
1806124		0,407	0,0819	0,9608	0,07869
1800126		0,428	0,106	0,9609	0,10186
1833451		0,45	0,134	1,0039	0,13452
1851428		0,472	0,1623	1,0374	0,16837
1949686		0,495	0,1951	1,1576	0,22585
1942452		0,521	0,2344	1,1576	0,27134
1969218		0,547	0,2754	1,1965	0,32952
1962525		0,574	0,3221	1,1966	0,38542
1951672		0,598	0,3671	1,1967	0,43931
1970487		0,626	0,4214	1,2234	0,51554
1996335		0,654	0,4814	1,2507	0,60209
1991985		0,681	0,5425	1,2508	0,67856
2010594		0,707	0,6036	1,2787	0,77182
2081497		0,732	0,668	1,3669	0,91309
2082224		0,759	0,7391	1,367	1,01035
2176923		0,789	0,8249	1,4622	1,20617
2248820		0,814	0,8987	1,5476	1,39083
2255045		0,837	0,9724	1,5653	1,52210
2344470		0,86	1,0465	1,6774	1,75540
2390495		0,884	1,1281	1,7372	1,95974
2528039		0,91	1,2205	1,8876	2,30382
2566717		0,934	1,3109	1,9336	2,53476
2589517		0,963	1,4226	1,9335	2,75060
2633788		0,989	1,5269	1,981	3,02479

Tabela 9.5 - Resultados obtidos da fonte 5

Fonte 5	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1724782		0,688	0,0196	0,8151	0,01598
1730543		0,689	0,0224	0,8252	0,01848
1728109		0,690	0,0292	0,8252	0,02410
1760236		0,693	0,0381	0,8664	0,03301
1756221		0,696	0,0527	0,8665	0,04566
1778797		0,700	0,0702	0,8987	0,06309
1786957		0,705	0,0921	0,9153	0,08430
1807944		0,712	0,1207	0,9435	0,11388
1855282		0,719	0,1516	1,0022	0,15193
1883065		0,726	0,188	1,0392	0,19537
1920631		0,734	0,2249	1,0906	0,24528
1920874		0,743	0,2697	1,0973	0,29594
1989104		0,752	0,3148	1,1798	0,37140
1995180		0,761	0,365	1,1942	0,43588
2035691		0,771	0,4171	1,246	0,51971
2042430		0,781	0,4786	1,2536	0,59997
2136020		0,791	0,5362	1,3653	0,73207
2169534		0,802	0,6003	1,4079	0,84516
2200866		0,812	0,6688	1,443	0,96508
2241705		0,825	0,7493	1,4791	1,10829
2312968		0,836	0,8264	1,5546	1,28472
2409034		0,848	0,9107	1,6557	1,50785
2454077		0,86	0,9968	1,6983	1,69287
2557516		0,872	1,0927	1,7994	1,96620
2671669		0,884	1,1819	1,921	2,27043
2768479		0,895	1,2742	2,026	2,58153
2795780		0,907	1,3686	2,0531	2,80987
2836502		0,919	1,4675	2,0949	3,07427
3058020		0,931	1,5742	2,3241	3,65860
3229589		0,943	1,6776	2,5146	4,21849

Tabela 9.6 - Resultados obtidos da fonte 6

Fonte 6	$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_1 * \varepsilon_2}$	σ (%)	$\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1}$	$\frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}$	$\frac{(1-\varepsilon_1)}{\varepsilon_1} * \frac{(1-\varepsilon_2)}{\varepsilon_2}$
1773428		0,792	0,0301	0,8253	0,02484
1793608		0,792	0,0346	0,851	0,02944
1809524		0,793	0,0424	0,873	0,03702
1822384		0,794	0,0541	0,8933	0,04833
1836965		0,796	0,0692	0,9163	0,06341
1854199		0,798	0,0889	0,9422	0,08376
1873134		0,8	0,1128	0,9689	0,10929
1904301		0,803	0,1413	1,009	0,14257
1926514		0,806	0,1722	1,0401	0,17911
1960764		0,809	0,2064	1,086	0,22415
1996821		0,813	0,243	1,1339	0,27554
2019194		0,816	0,2866	1,1631	0,33334
2060357		0,82	0,33	1,2146	0,40082
2072267		0,824	0,3809	1,2302	0,46858
2190029		0,833	0,4899	1,3636	0,66803
2245571		0,837	0,5464	1,4289	0,78075
2331295		0,842	0,6085	1,5259	0,92851
2417703		0,847	0,6724	1,6223	1,09083
2537174		0,852	0,7417	1,7547	1,30146
2605156		0,857	0,813	1,8285	1,48657
2730003		0,862	0,8953	1,9553	1,75058
2925037		0,868	0,9797	2,1558	2,11204
3051008		0,873	1,0657	2,2867	2,43694
3175991		0,879	1,1541	2,4142	2,78623
3327482		0,885	1,2493	2,5679	3,20808
3592595		0,891	1,3491	2,836	3,82605
3746261		0,896	1,4444	3,0005	4,33392
3858914		0,902	1,5449	3,1144	4,81144
4118519		0,908	1,6601	3,3757	5,60400

Por ajuste multiparamétrico dos resultados de todas as fontes medidas obtêm-se uma matriz com os parâmetros .

Tabela 10 - Parâmetros obtidos por ajuste multiparamétrico dos resultados de todas as medidas das fontes usadas para a Medição 2.

	N₀	A	B	C
Parâmetros	0,98545	-0,22679	0,87847	0,08154
Incertezas	0,00373	0,00915	0,00317	0,00482

Os resultados experimentais obtidos por ajuste multiparamétrico foram novamente comparados com os resultados da aplicação da matriz dos parâmetros pela simulação de Monte Carlo.

Tabela 11 - Comparação dos resultados experimentais com os resultados de Monte Carlo.

Método	Atividade
Monte Carlo	(0,988 ± 0,002)MBq/g
Experimental	(0,985 ± 0,004)MBq/g

A comparação da atividade obtida experimentalmente e a obtida pelo método de Monte Carlo tanto na medição 1 como na medição 2, estão de acordo dentro da incerteza experimental, conforme mostra os resultados da tabela 21.

Tabela 12 – Comparação dos resultados das duas medições da atividade extrapolada

	Experimental	Monte Carlo
Medição 1	(0,778 ± 0,003)MBq/g	(0,772 ± 0,003)MBq/g
Medição 2	(0,985 ± 0,004)MBq/g	(0,988 ± 0,002)MBq/g

Além dessas comparações com a atividade extrapolada, outras ainda podem ser feitas, como a comparação do espectro de raios gama experimental proveniente do detector HPGe com o espectro simulado desse detector pelo método de Monte Carlo, como ilustra a figura 30.

Figura 30 - Comparação entre o espectro gama experimental do HPGe e o simulado por Monte Carlo

Outra comparação ainda é apresentada pelas figuras 31 e 32. Na figura 31 é ilustrada a curva extrapolada da atividade, prevista pela simulação em Monte Carlo feita pelo programa ESQUEMA, considerando-se duas janelas gama, uma para os fótons de aniquilação de 511 keV e outra para os de 1077 keV, e na figura 32 é ilustrada a curva de extrapolada da atividade obtida experimentalmente, levando-se em conta as mesmas janelas gama.

Figura 31 - Curva de extrapolação prevista pela simulação de Monte Carlo normalizada para a Medida1 com a aplicação da equação multiparamétrica

Figura 32 - Curva de extrapolação obtida experimentalmente com a aplicação da equação multiparamétrica – Medida1

5.3. Conclusão

O ^{68}Ga possui meia-vida muito curta de 67,7 minutos, o que dificulta o uso de absorvedores para obtenção da curva de extrapolação e consequentemente o resultado da atividade. Com a aquisição de dados feita por software (SCS), foi possível a padronização de ^{68}Ga sem o uso de absorvedores e a realização do registro de dados das fontes tanto da medição 1 quanto da medição 2 em um único dia cada medição.

Esta padronização por meio do sistema de coincidências por software (SCS) foi bem sucedida. A atividade foi determinada pelo método de extrapolação multiparamétrico, utilizando-se o método de discriminação eletrônica para variação das eficiências de pósitrons e de captura eletrônica.

Os resultados para as soluções medidas mostraram boa concordância com a simulação de Monte Carlo, o que demonstra a confiabilidade do processo de simulação proporcionando uma curva de extrapolação confiável.

6.REFERÊNCIAS

1. INMETRO, **Metrologia Científica** Disponível em < <http://www.inmetro.gov.br/metcientifica/> > . Acesso em: 22 Abril 2013.
2. OKUNO, E.; CALDAS, I. L. ;CHOW, C. **Física para Ciências Biológicas e Biomédicas**,São Paulo, 2 a ed.,EditoraHarbra.,1986 .
3. MOURA, L. P.,**Método de Coincidência Generalizado para a Medida Absoluta da Atividade de Radionuclídeos - Aplicação da Determinação do Coeficiente de Conversão Interna da Transição de 279 keV do ^{203}TI** .Tese de Doutorado apresentada à Universidade de Campinas, 1969.
4. Campion, P.J. ***The Standardization of Radioisotopes by the Beta-Gama Coincidence Method Using High Efficiency Detectors***. Int. J. Appl. Radiat. Iso., 4 ,p: 232 – 248, 1959.
5. Baerg, A P **Absolute Measurement of Radioactivity**, Metrologia, 3_(4), p:1 0 5 - 1 0 8 , 1967.
6. KNOLL, G. F.,***Radiation Detection and Measurement***. 2ªed.,JohnWiley & Sons, New York, 1989.
7. EVANS, R. D.; DAVISSON, C. M.; ***The Atomic Nucleus***. New York, McGraw-Hill, 1955.
8. TONGU, M. L. O., **Aplicação do Método de Monte Carlo na Padronização de Radionuclídeos Emissores de Pósitrons** . São Paulo; 2009 . Dissertação (Mestrado)-Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN).

9. TAKEDA , M. N., **Aplicação do Método de Monte Carlo do Estudo da Padronização de Radionuclídeos com Esquema de Desintegração Complexos em Sistema de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$** São Paulo; 2006 . Tese (Doutorado) Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN).

10. Win, Z.; Al-Nahhas, A.; Rubello,D.; Gross, D. M. D.; ***Somatostatin receptor PET imaging with Gallium-68 labeled peptides.*** Q J Nucl Med Imaging;51:244-250, 2007

11. TOLEDO ,F.,**Desenvolvimento de um Sistema Eletrônico com Registro Simultâneo de Amplitude e Instante de Ocorrências dos Pulsos, Aplicado ao Método de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$** – São Paulo; 2009 . Dissertação (Mestrado)-Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN).

12. BNM – LNHB/CEA – **Table de Radionucléides** - CEA ISBN 2 7272 0200 8 http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ga-68_tables.pdf acesso em 01/05/2012.

13. KAPLAN, I., **Física Nuclear**, Rio de Janeiro,Ed. Guanabara Dois S. A., 2a. ed.,1978.

14. **NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS.** *Handbook of radioactivity measurements procedures.* Report n. 58, Nov. 1978.

15. EISBERG, R.; RESNICK, R.,**Física Quântica. Átomos, Moléculas, Sólidos Núcleos e Partículas.** Rio de Janeiro: Campus, 2002.

16. CHUNG, K.C., **Introdução à Física Nuclear**. Rio de Janeiro: EDURJ, 2001.
17. KELLER, A.; **Isotope Stability** Disponível em <<http://kaffee.50webs.com/Science/activities/Chem/Activity.Isotopes.Table.htm>> . Acesso em: 20 Jan. 2013.
18. HELMER, R.G. and SCHONFELD, E., **BNM – Table de Radionucléides**, *Commissariat à L'Énergie Atomique*, 2004.
19. MARMIER, P., SHELDON, E., **Physics of Nuclei and Particles**, Academic Press, 1969.
20. HILÁRIO, K. A. F., **Desenvolvimento de Métodos de Medida de Atividade Empregando Sistemas de Coincidência para Radionuclídeos Que Desintegram Pela Dupla Emissão $\beta^- - \beta^+$ Captura Eletrônica - Aplicação na Padronização do ^{192}Ir , ^{152}Eu e ^{186}Re** - São Paulo; 2002 . Tese (Doutorado) Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN).
21. DIAS, M. S., Comunicação pessoal, 2012.
22. Guimarães, C. O. **Eficiência de Detectores HPGe para Fótons de 4 a 10 MeV**. São Paulo - 2005. Dissertação (Mestrado) – IFUSP - Universidade de São Paulo.
23. FONSECA, K. A., **Medida Absoluta da Atividade e Determinação da Taxa de Emissão Gama por Desintegração do ^{126}I** . Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares/USP, 1997.
24. BUCKMAN, S. M.; IUS, D., **Digital Coincidence Counting, Nuclear Instrumentation and Methods in Physics Research.**, A 369 368-374, 1996.

25. HAVELKA, M.; AUERBACH, P.; SOCHOROVÁ, J., **Software Coincidence Counting, Applied Radiation and Isotopes.**, 56 265-268, 2002.
26. NATIONAL INSTRUMENTS., **Curso do Software - Versão 6.0 , Código do Manual 322682^a-01 Ed.**, de novembro de 2001.
27. LAVRAS, W.O., **Desenvolvimento de Métodos de Medida de Atividade de Radionuclídeos Utilizados em Medicina Nuclear- Aplicação na Padronização do ⁵¹Cr e ¹⁵³Sm.** São Paulo; 2002 . Dissertação (Mestrado)-Instituto de Pesquisas Energética e Nucleares (IPEN).
28. Metropolis, N.; Ulam, S. ; ***The Monte Carlo Method***; *Journal of the American Statistical Association* , Vol. 44, No. 247 (Set., 1949), pp. 335-341.