AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**PADRONIZAÇÃO EM SISTEMA PRIMÁRIO POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$ E
DETERMINAÇÃO DAS INTENSIDADES DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO DOS
RADIONUCLÍDEOS Cu-64 e Ho-166**

IONE MAKIKO YAMAZAKI

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

Orientador:

Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas

Coorientador:

Prof. Dr. Mauro da Silva Dias

São Paulo

2019

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho,
para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

YAMAZAKI, I. M. ***Padronização em sistema primário por coincidências 4pi.beta-gama e determinação das intensidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos Cu-64 e Ho-166***. 2019. 150 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <www.teses.usp.br> (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Yamazaki, Ione Makiko

Padronização em sistema primário por coincidências 4pi.beta gama e determinação das intensidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos Cu-64 e Ho-166 / Ione Makiko Yamazaki; orientador Marina Fallone Koskinas; co-orientador Mauro da Silva Dias. -- São Paulo, 2019.
150 p.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2019.

1. padronização primária do Cu-64. 2. padronização primária do Ho-166. 3. sistema de coincidências 4pi.beta-gama. 4. probabilidade de emissão gama. I. Koskinas, Marina Fallone, orient. II. Dias, Mauro da Silva, co-orient. III. Título.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**PADRONIZAÇÃO EM SISTEMA PRIMÁRIO POR COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{-}\gamma$ E
DETERMINAÇÃO DAS INTENSIDADES DE EMISSÃO GAMA POR DECAIMENTO DOS
RADIONUCLÍDEOS Cu-64 e Ho-166**

IONE MAKIKO YAMAZAKI

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

Orientadora:
Profa. Dra. MARINA FALLONE KOSKINAS

Coorientador:
Prof. Dr. MAURO DA SILVA DIAS

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2019

DEDICATÓRIA

Aos meus pais José e Makitian (em memória)

Ao meu irmão Edison e família

Ao Valmiro

AGRADECIMENTOS

À Dra. Marina Fallone Koskinas, orientadora deste trabalho, um agradecimento muito especial, pelo seu apoio, atenção, parceria e disponibilidade constante, pela confiança em mim depositada e pelos conhecimentos transferidos durante o desenvolvimento desta tese.

Ao Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), na pessoa do Dr. Mauro da Silva Dias, pelo valioso, essencial suporte técnico oferecido no decorrer deste trabalho.

Aos colegas de operação do reator IEA-R1, nas irradiações efetuadas.

Aos colegas do Laboratório de Metrologia Nuclear que de alguma forma colaboraram no bom andamento e execução deste trabalho.

Aos meus pais, José Yamazaki e Makina Yamazaki, (em memória), que sempre apoiaram e incentivaram com muita determinação os meus anos de estudo, aproveito esta oportunidade para novamente agradecê-los por tudo, onde eles estiverem.

Ao meu irmão Edison Yamazaki, à cunhada Sônia Regina Buturi Yamazaki, aos “meninos” Thomas Buturi Yamazaki e Henry Buturi Yamazaki, que mesmo tão distantes, pelos conselhos, incentivo e torcida constantes.

Ao Valmiro Guilherme de Santana, pelo seu cuidado, carinho, estímulo e suporte pessoal contínuo, que me fizeram superar os obstáculos.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Superintendente Dr. Wilson Aparecido Parejo Calvo, pela oportunidade oferecida.

A todos que direta ou indiretamente colaboraram na execução e realização deste trabalho.

RESUMO

YAMAZAKI, I.M. **Padronização em sistema primário por coincidências $4\pi\beta-\gamma$ e determinação das intensidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos ^{64}Cu e ^{166}Ho .** 2019. 150 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) realizou a padronização primária dos radionuclídeos ^{64}Cu e ^{166}Ho . Esses radioisótopos são utilizados na Medicina Nuclear em investigações diagnósticas e em radioterapia. A atividade absoluta foi determinada utilizando o método de coincidências $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ associado à técnica de extrapolação de eficiência. Para isto, foram utilizados um contador proporcional em geometria 4π acoplado ao um contador de cintilação NaI (TI). Para a padronização do ^{64}Cu foram utilizados dois sistemas para registro de dados: sistema TAC e sistema SCS. No sistema TAC é utilizado o módulo *Time to Amplitude Converter* (TAC) associado a um analisador multicanal, sendo que a eficiência do detector $4\pi\text{PC}$ foi variada por meio de absorvedores externos e foi aplicado fator de correção para as eficiências beta denominado fator Kawada. No sistema SCS (*Software Coincidence System*) o registro dos eventos foi feito por meio da digitalização dos pulsos, a eficiência do detector $4\pi\text{PC}$ foi variada por discriminação eletrônica e a atividade foi obtida pela extrapolação biparamétrica. A padronização do ^{166}Ho em sistema de coincidências $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ foi realizada utilizando o sistema de aquisição de dados por software, SCS (*Software Coincidence System*). Para determinação das probabilidade de emissão gama dos radionuclídeos foi utilizado um espectrômetro gama HPGe calibrado com ampolas padrão de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{241}Am , calibradas no sistema primário $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$. A probabilidade de emissão gama por decaimento do fóton de 1345,7 keV do ^{64}Cu obtida foi de 0,472 (10) % apresentando um bom acordo com os dados da literatura. A probabilidade de emissão gama por decaimento do fóton gama de 1379,45 keV do ^{166}Ho foi de 0,936 (4) %. Por meio destas medidas foi possível também a determinação das intensidades relativas de outros fótons emitidos por este radionuclídeo. Os resultados obtidos foram concordantes com a literatura dentro da incerteza experimental.

Palavras chaves: Padronização primária do ^{64}Cu e ^{166}Ho , sistema de coincidências $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$, probabilidade de emissão gama

ABSTRACT

YAMAZAKI, I.M. **Primary standardisation of ^{64}Cu and ^{166}Ho radionuclides in the $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ coincidence system and determination of its gamma-ray emission probability per decay** . 2019. 150 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

The procedure followed by the Nuclear Metrology Laboratory (LMN) at the Nuclear and Energy Research Institute (IPEN) for the primary standardization of ^{64}Cu and ^{166}Ho is described. These radionuclides are widely applied to Nuclear Medicine such as in diagnostic investigations and in radiotherapy. The absolute activity of both radionuclides were determined by the efficiency extrapolation method applied to $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ coincidence counting system using a proportional counter in 4π geometry coupled with NaI(Tl) scintillation counter. The primary standardisation of ^{64}Cu for the conventional coincidence counting, the events were registered using a Time to Amplitude Converter (TAC) system associated with a multi-channel analyzer and by a software coincidence counting system, SCS, a digital method for primary activity measurements that simplifies the setting of optimal coincidence parameters. For performing the standardization of ^{64}Cu in the TAC system, the efficiency of the $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ detector was varied using external absorbers and in order to correct the beta efficiency, the Kawada factor was applied. In the SCS counting, the events were registered by means of pulse digitalization and the efficiencies (ε_{EC} e ε_{β}) were varied through electronic discrimination. The biparametric method was used for determining the absolute activity and the result was in good agreement with the ones obtained with TAC system. The standardization of ^{166}Ho in the primary system was performed using the software coincidence counting, SCS. The gamma-ray emission probability per decay of the main transitions of both radionuclides were determined using the results obtained from the primary method, the $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ coincidence system, associated with a calibrated HPGe gamma-ray spectrometer with standard ampoules of ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{241}Am , previously standardized in the $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ system. The gamma-ray emission probability per decay of the 1345,7 keV transition of ^{64}Cu was 0,472 (10) %, in good agreement with the literature. The gamma-ray emission probability per decay of the 1379,45 keV transition of ^{166}Ho was 0,936 (4) %. It were also determined the relative gamma ray emission probability of other gamma rays for this nuclide. All the results obtained were in good agreement with the literature.

Keywords: ^{64}Cu and ^{166}Ho primary standardization, $4\pi(\text{PC})-\gamma$ coincidence counting, emission gamma probability

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO.....	1
1.1	Objetivos.....	4
1.2	Originalidade e relevância do trabalho.....	4
1.3	Estrutura do trabalho.....	6
2	FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	8
2.1	Radioatividade.....	8
2.2	Decaimento Radioativo.....	9
2.2.1	Atividade.....	10
2.2.2	Decaimento β^-	12
2.2.3	Decaimento β^+	13
2.2.4	Decaimento por captura eletrônica.....	15
2.2.5	Transição Gama.....	17
2.2.6	Decaimento por emissão γ	18
2.2.7	Conversão interna.....	19
2.2.7.1	Coeficiente de Conversão Interna ($\alpha\tau$).....	20
2.2.8	Emissão de eletrons Auger e Raios X.....	21
2.3	Interação da Radiação com a Matéria.....	21
2.3.1	Interação de Partículas Carregadas Leves (β^- , pósitrons, elétrons Auger e de conversão interna.....	23
2.3.2	Interação de Fótons.....	24
2.3.2.1	Efeito Fotoelétrico.....	25
2.3.2.2	Efeito Compton.....	25
2.3.2.3	Produção de Pares.....	27
2.4	Detectores de Radiação.....	29
2.4.1	Detectores Cintiladores.....	30
2.4.2	Detector Proporcional a Gás.....	33
2.4.3	Detector Semicondutor.....	37
3	MATERIAIS E MÉTODOS.....	41
3.1	Características dos dois radionuclídeos selecionados.....	41

3.1.1	^{64}Cu	44
3.1.1.1	Revisão da Literatura do ^{64}Cu	46
3.1.2	^{166}Ho	48
3.1.2.1	Revisão da Literatura do ^{166}Ho	50
3.2	Método de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$	51
3.2.1	Equações do Método de Coincidência.....	52
3.2.2	Método da Extrapolação Linear da Eficiência.....	55
3.2.3	Técnica de extrapolação biparamétrica.....	58
3.3	Padronização do ^{64}Cu	59
3.3.1	Equações para padronização do ^{64}Cu pelo método de coincidências com absorvedores externos no sistema TAC.....	59
3.3.2	Padronização do ^{64}Cu pelo método de coincidências com discriminação eletrônica no sistema SCS.....	63
3.4	Padronização do ^{166}Ho	63
3.5	Espectrometria gama.....	64
3.5.1	Calibração do espectrômetro HPGe.....	65
3.6	Simulação pela técnica de Monte Carlo.....	66
3.6.1	Simulação da curva de extrapolação da eficiência do sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$	66
3.6.2	Determinação da eficiência do espectrômetro HPGe pela técnica de Monte Carlo.....	68
4	PARTE EXPERIMENTAL	69
4.1	Programas utilizados para as análises dos dados experimentais.....	69
4.2	Sistemas de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ e os arranjos eletrônicos.....	70
4.2.1	Correções aplicadas no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$	74
4.3	Sistema eletrônico utilizando módulo TAC (Time to Amplitude Converter)..	76
4.4	Sistema de coincidências por software (SCS).....	78
4.5	Detector de HPGe ou Germânio Intrínseco.....	81
4.5.1	Correções aplicadas nos espectros obtidos com detector HPGe.....	83
4.5.2	Análise dos espectros.....	84
4.6	Preparação das amostras de ^{64}Cu e ^{166}Ho	86
4.6.1	^{64}Cu	86

4.6.2	^{166}Ho	89
5	RESULTADOS E DISCUSSÕES	90
5.1	Resultados do ^{64}Cu em Sistema TAC e SCS.....	90
5.1.1	Sistema TAC.....	90
5.1.2	Sistema SCS.....	99
5.1.3	Comparação de dados experimentais com simulação de Monte Carlo.....	103
5.1.4	Curva de calibração do espectrómetro HPGe para ampolas para distância fonte –detector de 17,8 cm	105
5.1.5	Probabilidade de emissão por decaimento da transição gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu	109
5.2	Resultados do ^{166}Ho em Sistema SCS.....	112
5.2.1	Comparação de dados experimentais com simulação de Monte Carlo.....	119
5.2.2	Curva de calibração do espectrómetro HPGe com absorvedor de alumínio para ampolas.....	121
5.2.2.1	Fatores de correção para efeito soma.....	125
5.2.3	Probabilidade de emissão por decaimento da transição gama de 80,57 keV e 1379,45 keV do ^{166}Ho	127
6	CONCLUSÃO E ETAPAS FUTURAS	138
7	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	140

1 INTRODUÇÃO

O campo da metrologia tem apresentado um grande avanço nos últimos anos, com a implantação de sistemas de controle de qualidade, para assegurar a confiabilidade e rastreabilidade das medidas em diversos campos. Uma decorrência direta é a criação de laboratórios certificados e a utilização de dados cada vez mais bem determinados com menores incertezas e referenciados aos órgãos de controle.

A radiação nuclear desde a sua descoberta até os dias atuais vem sendo empregada em muitas aplicações tecnológicas em vários setores (ZIMMERMAN, 2006; QAIM, 2012; JUDGE, 2014). Por esta razão, o interesse nos parâmetros nucleares para aplicação na física das radiações ionizantes é de grande relevância pois tem sido utilizados na indústria, agricultura, na área médica, em especial na medicina nuclear, no meio ambiente, na pesquisa etc.

Em razão dessas aplicações, diversos estudos são realizados para obtenção de informações cada vez mais precisas sobre os radionuclídeos, o que implica na melhoria do conhecimento dos parâmetros de seu esquema de desintegração como a meia vida e a intensidade da radiação gama emitida. O conhecimento desses parâmetros com boa exatidão está relacionado a uma boa precisão do valor da atividade do radionuclídeo utilizado e assim a sua aplicação. (POMMÉ, 2007; FONSECA et al, 2008; LUCA et al., 2012; COLLINS, et al., 2014; ZIMMERMAN, et al., 2018).

No que concerne os radionuclídeos de uso em medicina nuclear, a qualidade dos resultados é de vital importância por estarem diretamente relacionados às vidas humanas. Nesta área há também um contínuo desenvolvimento de novos radionuclídeos e radiofármacos, seja para diagnóstico como para tratamento, requerendo assim o desenvolvimento de métodos de padronização, de medidas de padrões com boa exatidão especialmente no caso de novos radionuclídeos de uso em medicina nuclear, bem como à necessidade crescente de reavaliações de dados nucleares para a melhoria das incertezas por meio de medidas absolutas para garantir a confiabilidade das medidas (MOURA, 1969; PIBIDA et al., 2017; BERGERON et al., 2018). Em geral, os radionuclídeos de meia vida curta tanto os emissores de radiação gama e X, como os emissores de partículas β^- , pósitrons, captura eletrônica, partículas alfa e elétrons Auger, são os isótopos selecionados

para diversas aplicações na área médica, em particular na radioterapia interna e em diagnóstico por imagem PET (*Positron Emission Tomography*) e SPECT (*Single Photon Emission Computed Tomography*). (VOLKERT et al., 1991; QAIM, 2012)

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), localizado no Centro do Reator de Pesquisas (CRPq) do IPEN, tem usado intensivamente o reator nuclear IEA-R1 como fonte de nêutrons. Desde a sua fundação em 1964, o LMN tem desenvolvido diversas atividades relacionadas com padronizações nas áreas de Metrologia Nuclear. Neste campo, o foco principal está voltado ao desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos utilizados em diversas áreas como em calibrações, verificações dos diversos sistemas de medida da radioatividade e ainda na melhoria dos parâmetros nucleares de interesse. No campo da metrologia nuclear, o LMN esteve envolvido na padronização primária de diversos radionuclídeos, por exemplo: ^{51}Cr , ^{67}Ga , ^{186}Re , ^{182}Ta , dentre outros. (LAVRAS, et al., 2001; KOSKINAS et al., 2008b; FONSECA et al., 2008; MOREIRA, 2010; DIAS et al., 1998, 2014).).

Os radionuclídeos de interesse em Medicina Nuclear e que podem ser produzidos no reator de pesquisas IEA-R1 são: ^{64}Cu , ^{166}Ho , ^{188}Re , $^{103\text{m}}\text{Rh}$ e ^{105}Rh e os dois radioisótopos escolhidos para este trabalho foram ^{64}Cu e ^{166}Ho , constituindo assim novos desafios para o LMN. Outros radionuclídeos que não são produzidos no reator também tem sido padronizados, com o objetivo tanto de atender a comunidade ligada à Medicina Nuclear como para participar de comparações internacionais (FERREIRA et al., 2004; BACARELLI et al., 2008; KOSKINAS et al., 2002, 2006, 2008a, 2008b, 2014; MATOS et al., 2014; DIAS et al., 1998, 2014).

Para todos estes propósitos, o LMN dispõe de sistemas de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, aplicando uma metodologia específica para cada radionuclídeo.

Padronização de radionuclídeos significa medir sua atividade através de métodos primários ou absolutos (atividade absoluta), dependendo apenas das grandezas observáveis (por exemplo, das contagens), sem que tenha necessidade de utilizar uma curva de eficiência de detecção, ou os parâmetros do esquema decaimento ou ainda ter que utilizar padrões para calibração e comparação, aplicando para este fim os fundamentos teóricos (CAMPION, 1959; BAERG, 1966, 1967, 1973; HOUTERMANS, 1962; MOURA, 1969) e arranjos experimentais adequados, (O'KELLEY, 1962; MARMIER, 1969; KNOLL, 2010), como o método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ associado à técnica de extrapolação da eficiência.

A metodologia que vem sendo utilizada com sucesso por diversos laboratórios para medidas de padronização primária de radionuclídeos é utilizando um contador β em geometria 4π . (CAMPION, 1959; BAERG, 1966, 1967; MOURA, 1969; KAWADA, 1986; SAHAGIA et.al., 2012; PIBIDA et al., 2017). Esta técnica consiste em realizar medidas com detectores de radiação beta em geometria 4π em conjunto com detectores gama, (sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$), registrando as taxas de contagens de eventos correlacionados (ou coincidentes) da radiação gama com a partícula beta associada (coincidência, registrando uma única contagem (de coincidência). No capítulo 3 esta metodologia está descrita com maiores detalhes.

A efetividade do uso de radionuclídeos para fins diagnósticos e terapêuticos, depende diretamente da determinação das quantidades a serem administradas necessitando, portanto, de padrões radioativos com rastreabilidade a laboratórios certificados. Para os nuclídeos que possuem meias-vidas da ordem de horas, é conveniente que os laboratórios de metrologia nuclear estejam próximos aos centros produtores, como é o caso do laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN, e que estejam capacitados para a sua padronização.

Visando esta capacitação, o LMN tem implementado desde a sua fundação, diversos sistemas e métodos de medida de atividade (KOSKINAS, 1988; DIAS et al., 1996, 1998, 2014; BACARELLI et al., 2008; KOSKINAS et al., 2012a, 2012b; BRANCACCIO, 2013; NASCIMENTO, 2014), de análise de dados e de incertezas por meio da aplicação da metodologia de análise de covariância (CARDOSO, 2011).

O desenvolvimento de métodos computacionais de simulação dos sistemas de medida pela técnica de Monte Carlo (DIAS et al., 2006; TAKEDA, 2006) e de sistemas de medidas por software (TOLEDO, 2008, 2009) tem também ocasionado um grande avanço na padronização de radionuclídeos no LMN, principalmente nos de meia-vida curta (BRITO et al., 2010; KOSKINAS, et al., 2012a, 2012b; YAMAZAKI et al., 2018).

O LMN tem participado de várias Comparações Internacionais patrocinadas pelo *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM – França) e os resultados destas comparações atestam o excelente grau de confiabilidade dos sistemas desenvolvidos no LMN. (FONSECA, 2002).

1.1. OBJETIVOS

O objetivo geral do presente trabalho é a padronização de radionuclídeos com esquemas de desintegração complexos, isto é, que apresentem mais de um modo de decaimento com emissão simultânea de duas ou mais radiações distintas, por meio da técnica de coincidências associada a um sistema de aquisição de dados por software, SCS (*Software Coincidence System*), com simulação dos experimentos pelo método de Monte Carlo e determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento.

Objetivos Específicos:

- 1) Padronização dos radionuclídeos ^{64}Cu e ^{166}Ho por meio de medidas em Sistema de Coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ com dois sistemas de aquisição de dados distintos: o sistema SCS (*Software Coincidence System*) e o sistema TAC (*Time Amplitude Converter*), ambos totalmente desenvolvidos no LMN.
- 2) Aplicação do programa ESQUEMA desenvolvido pelo LMN utilizando a técnica de Monte Carlo para a simulação das curvas de extrapolação e comparação com as curvas de extrapolação determinadas experimentalmente para os dois radionuclídeos selecionados.
- 3) Determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento destes radionuclídeos por meio de medidas absolutas e em espectrômetro de HPGe calibrado.

1.2. ORIGINALIDADE E RELEVÂNCIA DO TRABALHO

A originalidade do tema está relacionada à padronização dos radionuclídeos selecionados por meio de medidas no sistema SCS desenvolvido no LMN, que permite a determinação da atividade a partir de uma única medida.

Neste método, os pulsos provenientes dos amplificadores são digitalizados sendo registrados os tempos de ocorrência de cada via e as amplitudes provenientes dos detectores $4\pi\beta$ e gama. As coincidências, os tempos mortos e tempo de resolução são estabelecidos posteriormente por meio de um software específico desenvolvido no LMN.

Na literatura há vários métodos que utilizam a técnica de digitalização dos pulsos provenientes dos detectores. No entanto, estes métodos utilizam, em geral, sistemas digitais que simulam os módulos eletrônicos, mas o método de saída de dados é o convencional, não utilizando um software de análise como no método do LMN (TOLEDO, 2008, 2009).

No presente trabalho, para determinar a atividade absoluta do ^{64}Cu , foram aplicados dois métodos distintos:

a) Determinação da atividade em sistema TAC, também desenvolvido pelo LMN, com variação das eficiências do detector $4\pi\beta$ por meio de absorvedores externos com aplicação do fator Kawada (KAWADA, 1986) para correção das eficiências beta. Este método não foi utilizado em outros trabalhos encontrados na literatura.

b) Determinação da atividade no sistema SCS do LMN aplicando o método biparamétrico, também não realizado por outros autores. Este método só é possível em medidas com variação das eficiências beta e de captura eletrônica feita por discriminação eletrônica.

Diversos laboratórios nacionais de metrologia realizaram a padronização do ^{64}Cu , seja os trabalhos mais antigos (CHRISTMAS et al., 1983; KAWADA, 1986) como os mais recentes (QAIM, et al., 2007; WANKE et al., 2010; LUCA, et al., 2012; AMIOT, et al., 2012; SAHAGIA, et al., 2012; BÉ, et al., 2012; HAVELKA and SOCHOROVÁ, 2014; PIBIDA et al., 2017), sendo que recentemente foi realizada uma comparação entre vários laboratórios europeus (BÉ et al., 2012) para estabelecer um consenso dos parâmetros nucleares do ^{64}Cu a serem adotados, sob a supervisão da EURAMET (*European Association of National Metrology Institutes*). No entanto, pelo fato de possuir uma meia vida curta (12,7 horas) e um esquema de desintegração complexo, o ^{64}Cu é considerado um radionuclídeo promissor com grande potencial para aplicações em radioterapia interna seletiva e em diagnóstico de imagem por PET e devido a estas razões, o laboratório nacional NIST (*National Institute of Standards of Technology*) continua estudando o ^{64}Cu , reavaliando os parâmetros nucleares e seu esquema de desintegração, visando obter dados cada vez mais precisos e assim, garantir maior confiabilidade em diversas aplicações na área médica, especialmente na oncologia. (PIBIDA, 2017; BERGERON, 2018; ZIMMERMAN, 2018).

Estes foram os motivos para realizar a padronização do ^{64}Cu utilizando os sistemas de aquisição de dados (analógico e digital) e os vários programas de análise que foram desenvolvidos integralmente no LMN.

O radionuclídeo ^{166}Ho foi escolhido para a determinação da atividade absoluta pelas seguintes razões:

a) não existir na literatura nenhum trabalho de medida de atividade absoluta (padronização) empregando o sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ e os valores existentes na

literatura medidos por métodos absolutos não serem recentes. (SEKINE e BABA, 1981; COURSEY, et al., 1994).

b) por apresentar grande potencial e interesse em aplicações na Medicina Nuclear, particularmente na radioterapia interna seletiva localizada de diversos tipos de tumores e por ser um emissor beta de alta energia (maior do que 1 Mev) e emissor gama, o torna apropriado para aquisição de imagens e para estudos de biodistribuição. Desta forma, é importante fazer uma reavaliação das intensidades (probabilidades) de emissão gama deste radionuclídeo. (VOLKERT et al., 1991; NIJSEN et al., 2001; BREITZ et al., 2006; COSTA, 2008; LIBERAL, 2013; RANJBAR et al., 2015; ZOLGHADRI et al., 2015; TEHRANI, 2016).

A padronização do ^{166}Ho foi feita em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$, utilizando um contador proporcional (*PC-proportional counter*) em geometria 4π juntamente com as medidas realizadas no SCS (*Software Coincidence System*) do LMN.

A relevância do tema do presente trabalho está ligada à necessidade sempre crescente da medida de padrões com boa precisão e exatidão, assim como à necessidade contínua de reavaliações do esquema de decaimento e de dados nucleares para a melhoria dos parâmetros de interesse, por meio de medidas absolutas. Portanto, é muito importante que o LMN esteja capacitado a padronizar radionuclídeos de grande interesse em Medicina Nuclear, principalmente aqueles de meia vida curta como o ^{64}Cu (12,7 horas) e o ^{166}Ho (26,8 horas).

1.3 Estrutura do Trabalho.

Nos capítulos seguintes são apresentados os tópicos necessários à compreensão da metodologia de medida de coincidências, de espectrometria gama, preparação das amostras e resultados. Desta forma, este trabalho está assim estruturado:

Capítulo 2 – FUNDAMENTOS TEÓRICOS: resume os fundamentos gerais incluindo os processos de decaimento radioativo, interações das radiações com a matéria, princípios de detecção, o método de coincidência $4\pi(\text{PC})\beta\text{--}\gamma$ e a técnica da extrapolação da eficiência.

Capítulo 3 – MATERIAIS E MÉTODOS: Neste capítulo são apresentadas as características dos dois radionuclídeos selecionados, a revisão bibliográfica, as metodologias empregadas no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ e no sistema HPGe,

reunindo teoria e técnicas utilizadas nas medidas de coincidências e de espectrometria gama.

Capítulo 4 – PARTE EXPERIMENTAL: são apresentados os programas utilizados para análise dos dados experimentais assim como os arranjos dos detectores, diagramas dos módulos eletrônicos empregados, os procedimentos de preparação das fontes radioativas utilizadas, as correções aplicadas para determinação das atividades e das probabilidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos estudados.

Capítulo 5 – RESULTADOS E DISCUSSÕES: Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos na padronização dos radionuclídeos ^{64}Cu e ^{166}Ho em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ e as probabilidades de emissão gama por decaimento.

Capítulo 6 – CONCLUSÃO E ETAPAS FUTURAS

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS, em ordem alfabética

2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste capítulo são abordados os fundamentos teóricos relacionados ao conceito de radioatividade, decaimento radioativo, interação da radiação com a matéria, princípios de detecção, o método de coincidência $4\pi(PC)\beta-\gamma$ e a técnica da extrapolação linear da eficiência.

2.1 Radioatividade

A radioatividade pode ser natural (espontânea) ou artificial. A artificial, ou induzida, é criada através de irradiações (transmutações nucleares) realizadas num reator ou acelerador nuclear e a natural se manifesta nos elementos radioativos e nos isótopos que se encontram na natureza. Atualmente, uma quantidade imensa de radioisótopos de quase todos os elementos pode ser produzida artificialmente. Eles possuem importantes aplicações, principalmente na medicina nuclear (terapia e diagnóstico), na indústria e na ciência em geral.

A radioatividade natural foi observada pela primeira vez pelo francês Henri Becquerel em 1896 enquanto trabalhava em materiais fosforescentes, sendo definida como a emissão espontânea de partículas atômicas (alfa, beta, nêutron, neutrino) e ondas eletromagnéticas (raios X e raios gama) por um elemento químico nuclearmente instável. Os núcleos instáveis sofrem diminuição gradual de sua atividade até atingir um estado de maior estabilidade, transformando sucessivamente em diferentes isótopos através da emissão de partículas carregadas e de fótons mediante um processo chamado radioatividade. É um fenômeno estocástico (ou probabilístico) e até 2008 eram 117 os elementos químicos observados. Desses, 92 são naturais e os restantes, artificiais. (OKUNO e YOSHIMURA, 2010; KRANE, 1988).

Um elemento pode emitir radiação independente de qualquer condição físico-química em que a amostra radioativa estiver submetida (sólido, líquido ou gasoso) e de fatores químicos (temperatura e pressão em que se encontra). (LOVELAND et al., 2006).

2.2 Decaimento Radioativo

As combinações de prótons e nêutrons em um núcleo atômico podem originar configurações nucleares instáveis devido ao desbalanceamento na razão entre o número de nêutrons e prótons. Este núcleo desintegra-se através da emissão de partículas carregadas e fótons para uma outra espécie que pode ser estável ou radioativa com a finalidade de realizar um ajuste da estrutura nuclear (Figura 1). Neste último caso, o núcleo resultante instável continua com o processo de emissão de partículas (α , β^- , β^+) e/ou radiação γ , até que um núcleo estável seja obtido. Este processo é denominado decaimento radioativo ou desintegração radioativa. (EVANS, 1955; KNOLL, 2010).

A desintegração radioativa ocorre por vários processos nucleares e dão origem a radiações que são classificadas em quatro tipos:

Radiação de partículas carregadas: partículas leves e carregadas pesadas

Radiação sem carga: radiação eletromagnética (raios X e gama) e nêutrons.

Figura 1 – Ilustração de um núcleo radioativo instável desintegrando com a emissão de partículas carregadas e de ondas eletromagnéticas.

Fonte: www.espaciociencia.com

Há dois tipos de fenômenos de mudança de estado em um núcleo energeticamente instável para dissipar o excesso de energia: desintegração (transmutação) e transição nuclear (dissipação de energia). No decaimento por transmutação nuclear, o radionuclídeo

original (denominado pai) dá origem ao nuclídeo filho de diferente número atômico (Z), emitindo partículas beta ou alfa (decaimento beta ou alfa) originando um novo elemento químico. A transição nuclear é por emissão de fótons (decaimento gama) e a dissipação de energia ocorre sem variação do número atômico Z, ou seja, pai e filho são o mesmo elemento. O átomo filho pode estar no estado fundamental ou pode continuar ainda instável e, neste caso, são necessárias mais emissões radioativas até alcançar o seu estado fundamental.

As diferentes propriedades de um radionuclídeo e os parâmetros característicos de seu decaimento, ou desintegração, são graficamente representados por diagramas denominados esquema de decaimento que sendo um fenômeno de natureza estocástica, pode ocorrer por vários caminhos com diferentes probabilidades. Estes esquemas apresentam os diversos ramos de decaimento, a probabilidade de emissão de cada ramo, as energias e as transições entre estes níveis, a meia-vida e a energia total da desintegração.

2.2.1. Atividade

Um núcleo instável (radionuclídeo) transforma-se espontaneamente em outro mais estável emitindo radiações. Este fenômeno denomina-se radioatividade e a sua unidade de medida designa-se por atividade, que é o número de desintegrações por segundo.

A atividade de uma fonte radioativa é definida como o número de desintegrações num determinado intervalo de tempo definida como λn , sendo regida pela lei fundamental do decaimento radioativo. (EVANS, 1955; KNOLL, 2010).

$$A = -\frac{dn}{dt} = \lambda n \quad (1)$$

A atividade é função exponencial do tempo de decaimento, t, onde A é a atividade da fonte no instante t e A_0 no instante t=0. Integrando a equação acima e chamando n_0 o número de átomos radioativos iniciais existentes na amostra, temos:

$$n(t) = n_0 e^{-\lambda t} \quad (2)$$

Onde:

λ é a constante de decaimento específico de cada radionuclídeo

n é o número de núcleos radioativos num instante posterior t.

A unidade da atividade tem sido historicamente Curie (Ci). Esta unidade vem sendo gradualmente substituída pelo seu equivalente no Sistema Internacional de Unidades (SI), becquerel (Bq), que corresponde a uma desintegração por segundo, definida pela Comissão Internacional de Medidas e Unidades Radiológicas (ICRU) em 1975. Assim, 1 becquerel (Bq) = 1 s⁻¹ e 1 curie (Ci) = 3,7 x 10¹⁰ Bq. (KNOLL, 2010).

Existe uma probabilidade λ_i associada a cada modo de decaimento de um determinado nível. Se um estado excitado decai para vários níveis de menor energia, as probabilidades de transição associadas são todas independentes. A probabilidade total λ (constante de decaimento radioativo) será a soma dos valores individuais (EVANS, 1955):

$$\lambda_T = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3 \quad (3)$$

Outra propriedade importante de um estado nuclear é sua meia-vida, que é dada por

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (4)$$

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 e a vida média, τ , é definida como o intervalo de tempo necessário para que a atividade decaia por um fator $1/e$, onde e é a base do logaritmo neperiano, sendo igual a $\tau = 1/\lambda$ (inverso da constante de decaimento). A Figura 2 mostra o gráfico exponencial do decaimento radioativo com os parâmetros τ e $T_{1/2}$.

Figura 2 – Curva de decaimento exponencial de um radioisótopo em função do tempo e seus principais parâmetros

Fonte: www.iaea.org/inis/collection

A estabilidade ou instabilidade nuclear é determinada pela competição entre a força de atração nuclear entre os prótons e nêutrons e a força de repulsão elétrica entre os prótons. Quando há um desequilíbrio entre estas forças o núcleo se torna instável e buscará sua estabilidade até atingir a condição de equilíbrio (estado fundamental), emitindo um ou mais tipos de radiação.

A seguir são apresentadas as radiações que são emitidas no processo de desintegração dos radionuclídeos estudados neste trabalho, a saber: emissão β^- , emissão β^+ (pósitron), emissão γ e por conversão interna, *IC* (*internal conversion*), sendo este um fenômeno que concorre com a emissão γ , captura eletrônica (*EC*) que compete com a emissão β^+ , elétrons Auger e raios-X.

2.2.2 Decaimento β^-

O termo geral decaimento β refere-se às desintegrações na qual o número atômico Z (carga nuclear) se altera de uma unidade enquanto o número de massa A permanece inalterado. Portanto, este tipo de transição engloba não apenas os decaimentos β^- e β^+ mas também a captura eletrônica, *EC*. Em muitos casos, o decaimento β não conduz diretamente ao estado fundamental do núcleo filho mas a um dos estados excitados ocorrendo de-excitação por emissão γ ou por elétrons de conversão interna o qual está descrito mais adiante no item 2.2.7.

O decaimento beta corresponde à emissão de elétrons pelo núcleo instável. Estes elétrons podem ser negativos (β^-) com mudança de carga nuclear de uma unidade de Z para $Z+1$ ou positivos (β^+), ocorrendo um decréscimo da carga de Z para $Z-1$. A emissão das partículas beta forma um espectro de energia contínuo que vai desde uma energia inicial até a energia máxima $E_{\max}$, que é característica do radionuclídeo emissor, podendo surgir sobreposições de linhas discretas sobre este espectro contínuo devido aos elétrons Auger e/ou elétrons de conversão interna (*IC*). Cada transição beta é caracterizada por uma energia total de decaimento ($E_{\max}$). Devido ao fato da energia de recuo do núcleo ser muito pequena (virtualmente zero), esta energia é dividida entre a partícula beta e o neutrino “invisível”. Assim, a partícula beta apresenta um espectro de energia característico para cada radionuclídeo num intervalo de energia variando entre zero até a energia total de decaimento. (MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010).

A energia do processo é compartilhada entre a partícula beta (β^-) e o anti-neutrino ($\bar{\nu}$). Neste decaimento o número de prótons no núcleo aumenta de uma unidade, enquanto que o número de massa permanece o mesmo, pois deixa de existir um nêutron. A equação por meio do balanço de carga e massa deste decaimento é dada por: (EVANS, 1955; KNOLL, 2010).

Onde:

${}_Z^AX$ é o núcleo pai

${}_{Z+1}^AY$ é o núcleo filho

β^- é a partícula beta

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

Q é a energia do processo

A Figura 3 apresenta um espectro típico de uma transição β^- .

Figura 3 – Espectro de energia da transição β^- do ${}^{36}\text{Cl}$

Fonte: (KNOLL, 2010).

2.2.3 Decaimento β^+

O pósitron tem a mesma massa do elétron e a mesma carga em valor absoluto porém de sinal contrário (elétron positivo). Essa desintegração é chamada de emissão de

pósitron ou simplesmente emissão beta positivo (β^+). Neste caso, admite-se que um próton do núcleo se transforma num nêutron, mais o pósitron.

A energia do processo é compartilhada entre o pósitron (β^+) e o neutrino (ν), o espectro de energia será contínuo sendo que a energia disponível no processo deve ser superior a 1,022 MeV, existindo assim um limiar energético, de modo a permitir a criação de um par nêutron-pósitron.

Nesse processo também não há alteração da massa, apenas do número atômico, e a equação por meio do balanço de carga e massa deste decaimento é dada por: (KNOLL, 2010).

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 neutrino

Q é a energia do processo

O pósitron emitido recombina-se com um elétron do meio, aniquilando-se mutuamente, originando dois fótons de aniquilação de 511 keV cada, podendo escapar do detector ou serem absorvidos no mesmo meio, pelos processos Compton ou fotoelétrico que estão descritos mais adiante.

A Figura 4 mostra o espectro da transição β^+ do ${}^{64}\text{Cu}$, onde $N(\text{Te})$ é o número de partículas com energia entre E e $E + dE$ e $(\text{Te})_{\text{max}} = 0.656 \text{ MeV}$

Figura 4 – Espectro de energia do decaimento β^+ para ^{64}Cu

Fonte: (EVANS, 1955; MARMIER e SHELDON, 1969)

O espectro de energia β^+ difere da forma do espectro β^- na região de baixa energia ($E=0$). A interação coulombiana entre a partícula β e o núcleo filho é a causa desta diferença.

O efeito da carga nuclear (repulsão coulombiana) sobre o espectro β^+ diminui o número de pósitrons de baixas energias e assim o espectro vai para zero próximo a origem. Por outro lado, o efeito da carga nuclear sobre as partículas β^- faz aumentar o número de elétrons de baixas energias fazendo com que o espectro β^- não se anule em $E=0$. (EVANS, 1955; MARMIER e SHELDON, 1969).

2.2.4 Decaimento por captura eletrônica

O decaimento por captura eletrônica (EC) ocorre quando a energia da transição é insuficiente para permitir a emissão de pósitron pelo núcleo. Neste caso, a transição é realizada através do processo de captura eletrônica onde o núcleo captura um elétron orbital, com emissão subsequente de raios X. (EVANS, 1955).

Um elétron orbital ao ser capturado pelo núcleo converte um próton em nêutron. A probabilidade de captura diminui progressivamente para elétrons de camadas mais externas, sendo maior para as camadas K ou L. A captura do elétron da camada K tem maior probabilidade de ocorrer, cerca de 90%, e o processo é denominado captura K. A

captura L também pode ocorrer, porém com menor probabilidade, cerca da 10%. A conservação de energia é obtida por emissão de um neutrino que carrega parte da energia disponível na desintegração:

Essa reação pode ser assim esquematizada:

Neste processo, é criada uma vacância na camada atômica que será preenchida por outro elétron atômico de um nível de energia mais alto (Figura 5). Em virtude do preenchimento sucessivo de vacâncias eletrônicas por elétrons de órbitas mais externas, ocorre a emissão de raios-X característico ou de elétrons Auger, descrito mais adiante no item item 2.2.8.

Figura 5 – Representação do processo de captura eletrônica (EC) e de emissão de raios X característico

Fonte: www.iaea.org/inis/collection

2.2.5 Transição Gama

Quando um núcleo atinge um de seus estados excitados ocorre liberação da energia excedente através da emissão de fótons, não ocorrendo alteração em Z ou A . Esta transição ocorre após um decaimento corpuscular de um núcleo instável, não havendo obrigatoriedade de decair diretamente ao estado fundamental, mas em várias etapas (ou níveis), $4 \rightarrow 1$, $4 \rightarrow 2$, etc. O espectro de energia da transição gama apresenta linhas discretas correspondente a cada transição, conforme ilustra a Figura 6.

Figura 6– Diagrama esquemático de uma transição gama e o espectro de energia dos raios γ emitidos

Fonte: (LOVELAND et al., 2006)

A transição gama, (T_γ), consiste na emissão de um fóton, ou na transferência desta energia excedente para um elétron da camada atômica denominado elétron de conversão interna e mais raramente, quando as condições de energia permitirem, através da criação de um par elétron-pósitron.

A intensidade total da transição gama é dada por: (EVANS, 1955).

$$T_\gamma = I_\gamma + I_{ec} + I_{e^\pm} \quad (11)$$

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 nêutron-pósitron

2.2.6 Decaimento por emissão γ

É o processo no qual a energia da transição gama é emitida sob a forma de radiação eletromagnética, apresenta um espectro discreto de energia correspondente a cada transição, com energias variando entre poucos keV a muitos MeV .

Um núcleo instável ao decair por emissão alfa ou beta pode ainda conter um excesso de energia devido aos nucleons estarem fora da configuração de equilíbrio e para atingir um estado energeticamente mais estável, esta energia excedente é emitida sob a forma de fótons. No processo de estabilização por decaimento gama, o radionuclídeo cede energia mudando seu estado sem alteração do número atômico e massa, apenas com liberação de energia.

A radiação γ é emitida com energia $h\nu$, que corresponde a diferença entre os níveis energéticos inicial E_i e final E_f daquela transição (Figura 7), conforme a equação:

$$E_\gamma = (E_i - E_f) - E_r \quad (12)$$

$$h\nu = (E_i - E_f) - (E_\gamma^2 / Mc^2) \quad (13)$$

Onde o último fator a direita da equação 13, (E_γ^2 / Mc^2) , corresponde à energia de recuo, E_r , do núcleo alvo durante o processo de emissão do fóton.

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

$E_\gamma = h\nu$, a energia da radiação gama, h = constante de Planck = $6,6252 \cdot 10^{-34}$ J.s ,
 ν = frequência da radiação, M a massa do núcleo emissor e c a velocidade da luz.

Os raios γ não tem carga elétrica, sendo semelhantes aos raios-X, mas com um comprimento de onda menor. As propriedades físicas dos raios gama, inclusive a sua interação com a matéria, são similares às dos raios-X. A diferença fundamental está na origem de ambos, enquanto os raios γ provêm do núcleo, os raios-X se originam das órbitas eletrônicas.

Figura 7 – Ilustração da emissão de radiação gama pelo núcleo

Fonte: www.iaea.org/inis/collection

2.2.7 Conversão Interna

O processo de conversão interna (IC – *Internal Conversion*) é um modo alternativo de desexcitação nuclear consistindo na transferência da energia excedente do núcleo diretamente a um elétron orbital (denominado elétron de conversão, mais provavelmente das primeiras camadas, K ou L), resultando na emissão de raios X (Figura 8). Parte dessa energia é utilizada para arrancar o elétron de sua órbita (energia de ligação, E_l) e o restante transformado na energia cinética do elétron de conversão, E_e :

$$E_e = E_\gamma - E_l \quad (14)$$

onde: E_γ é a energia de excitação do núcleo transferida ao elétron ejetado na forma de energia cinética, E_l é a energia de ligação da camada em que estava o elétron ejetado.

Os elétrons de conversão são monoenergéticos e os dois processos, γ e IC, competem entre si numa transição gama (do núcleo pai) e como nestas emissões não ocorre alteração do número atômico (Z), o espectro de raios X emitidos são característicos do núcleo filho. (EVANS, 1955).

Figura 8 - Ilustração do processo de conversão interna

Fonte: www.iaea.org/inis/collection

2.2.7.1 Coeficiente de Conversão Interna (α_t)

A probabilidade de que ocorra a emissão de um elétron de uma determinada camada eletrônica é definida pelo coeficiente de conversão interna (α), que corresponde a razão entre a probabilidade de emissão do elétron de conversão interna (I_{ec}) e emissão de raio γ (I_γ):

$$\alpha = I_{ec} / I_\gamma \quad (15)$$

Os elétrons emitidos podem ser de qualquer órbita eletrônica, portanto o coeficiente de conversão interna total α_T é a soma dos coeficientes de conversão das várias camadas atômicas, sendo dado por:

$$\alpha_t = \alpha_K + \alpha_L + \alpha_M + \dots = \frac{I_{ec}}{T_\gamma} \quad (16)$$

‘ Onde:

‘ α_K , α_L , etc, são os coeficientes de conversão interna para as camadas K, L, etc.; I_{ec} é a probabilidade total de emissão de elétrons de conversão interna da transição e T_γ é a probabilidade total da transição, $T_\gamma = I_\gamma + I_{ec}$. (EVANS, 1955).

2.2.8 Emissão de elétrons Auger e Raios X

Quando ocorre a emissão de um elétron por processo de conversão interna, por captura eletrônica ou por efeito fotoelétrico, ao retirar um elétron da nuvem eletrônica do átomo este é levado a um estado energeticamente excitado pois ocorre uma vacância numa das órbitas. A tendência é que ocorra um rearranjo dos elétrons para preencher esta vacância, onde os elétrons das camadas mais afastadas do núcleo e portanto, os mais energéticos, fazem uma transição para preenchimento deste nível com a emissão de fótons (raios X característicos), cuja energia é dada pela diferença dos níveis final e inicial.

De maneira alternativa, a energia de excitação do átomo pode ser transferida diretamente a um elétron de uma camada mais externa ocasionando a sua emissão. Este elétron ejetado é denominado Auger e tanto os raios X característicos como estes elétrons fornecem um espectro discreto de energia (MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010). No caso de átomos de alto número atômico é maior a probabilidade de emissão de fótons cujo comprimento de onda situa-se no espectro dos raios X característicos, já para os átomos de baixo número atômico é maior a probabilidade de ocorrer a emissão de elétrons Auger monoenergéticos, os quais possuem energias baixas comparadas com partículas beta ou elétron de conversão. Os elétrons Auger por possuírem baixas energias, da ordem de poucos keV, estão sujeitos a uma acentuada auto-absorção na própria amostra, são facilmente barrados com absorvedores finos e ainda podem ser absorvidos nas janelas dos detectores.

2.3 Interação da radiação com a matéria

A operação de detectores de radiação depende basicamente da maneira como a radiação incidente (partículas ou fótons) interage com o material do detector. Portanto, o conhecimento dos mecanismos de interação e de perda de energia da radiação incidente no meio absorvedor são fundamentais para a compreensão da resposta de detectores às diferentes radiações. A transferência de energia por uma partícula carregada ou fóton para os átomos do material alvo ocorrem principalmente pelo mecanismo de ionização e excitação em colisões que podem ser elásticas ou inelásticas.

De uma maneira geral, as interações resultam na transferência da energia total ou parcial da radiação incidente para os elétrons orbitais ou para os núcleos dos átomos do material absorvedor. A deposição parcial ocorre quando a radiação atravessa o detector antes de sua completa absorção, podendo a energia restante ser transferida aos materiais circundantes.

As partículas que possuem carga elétrica interagem continuamente com a força coulombiana dos elétrons do detector, induzindo excitação e/ou ionização dos átomos do meio. As partículas sem carga (nêutrons e fótons) não sofrem interações com o campo coulombiano dos elétrons, interagem com os núcleos dos átomos do absorvedor (reação de captura), conduzindo a alterações significativas nas propriedades da radiação neutra incidente em um único evento, podendo resultar na emissão de partículas carregadas pesadas secundárias ou na fragmentação do núcleo (fissão nuclear), que por sua vez ionizarão os átomos do absorvedor.

Os raios gama e X podem transferir todo ou parte da sua energia para os elétrons do material alvo, podendo originar elétrons secundários monoenergéticos de alta velocidade. Os detectores de radiação eletromagnética são geralmente projetados para absorver totalmente os mesmos, de maneira que os pulsos de saída possam corresponder à energia total depositada pelos fótons, porém nem sempre ocorre absorção total dos raios gama no volume do detector, dependendo da energia do fóton incidente. A radiação gama e X podem interagir de várias formas com a matéria, sendo que as três interações mais relevantes utilizadas como princípio para a detecção são o efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e produção de pares (KNOLL, 2010).

O alcance em um meio material, ou poder de penetração, depende do tipo de radiação, de sua energia e do próprio material absorvedor.

As partículas pesadas, como alfa, têm alcance muito curto podendo ser barradas por uma folha de papel. O poder de penetração dos elétrons na matéria é maior dependendo de sua energia, podendo percorrer até centímetros conforme a densidade do meio absorvedor. Os fótons de altas energias têm baixa probabilidade de interação, sendo capazes de atravessar espessas camadas de metal como o chumbo.

A compreensão dos diversos mecanismos de interação com o meio absorvedor das partículas carregadas leves (elétrons, pósitrons) e fótons têm grande importância, pois o método de coincidências se baseia na detecção de partículas β , elétrons Auger, de conversão interna, fótons γ e raios X.

2.3.1 Interação de Partículas Carregadas Leves (β^- , pósitrons, elétrons Auger e conversão interna)

As partículas carregadas interagem com a matéria através de forças coulombianas, colidindo na eletrosfera excitando ou ionizando átomos do meio, cedendo total ou parcialmente a sua energia cinética por colisão e radiação. São consideradas partículas carregadas leves as que têm massa de repouso semelhante a do elétron. Estas partículas perdem uma boa quantidade de energia numa única colisão, sendo facilmente desviadas.

A interação de elétrons e pósitrons com a matéria por meio de colisão ocorre por diversos processos: (MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010).

Colisões elásticas com elétrons atômicos : A energia incidente é menor que 100 eV, ocorre a conservação da energia e da quantidade de movimento e a energia transferida é menor que o potencial de ionização dos elétrons, 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: Nesse processo ocorre a deflexão (desvio), mas não ocorre ionização e excitação do átomos e moléculas do meio material.

Colisões inelásticas com núcleos atômicos: Também conhecida como perda de energia por radiação $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{rad}$. Partículas carregadas ao passar perto do núcleo podem interagir com o seu campo coulombiano, são desaceleradas e desviadas de suas trajetórias originando emissão de ondas eletromagnéticas, fenômeno este denominado radiação de “*Bremsstrahlung*”, que é um espectro contínuo de raios X associado à desaceleração da partícula carregada incidente.

A perda total de energia $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{total}$ será dada por :

$$\left(\frac{dE}{dX}\right)_{total} = \left(\frac{dE}{dX}\right)_{col} + \left(\frac{dE}{dX}\right)_{brems} \quad (17)$$

Existe uma relação entre a perda de energia em função da energia do elétron incidente. Para baixas energias (abaixo de 1 MeV) a perda ocorre preferencialmente por

colisão $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{col}$, sendo que a perda de energia por radiação $\left(\frac{dE}{dX}\right)_{brems}$, se dará predominantemente para valores de energia acima de 1 MeV.

A razão entre a perda de energia por radiação e colisão para elétrons é dada por:

$$\frac{\left(\frac{dE}{dX}\right)_{brems}}{\left(\frac{dE}{dX}\right)_{col}} = \frac{E.Z}{700} \quad (18)$$

Onde:

Z é o número atômico

E é a energia em MeV

2.3.2 Interação de Fótons

Os fótons são classificados de acordo com a sua origem.

Os raios gama são emitidos nas transições nucleares. Bremsstrahlung, ou raios X contínuo, resultam da deflexão ou desaceleração de partículas carregadas no campo coulombiano dos núcleos do meio absorvedor. Os raios X característicos são emitidos nas transições atômicas de elétrons ligados entre as camadas atômicas K, L, M....e a radiação de aniquilação é emitida quando um pósitron e um nêutron se combinam. A energia quântica destas radiações é expressa por $E = h\nu$, onde ν é a frequência e h , a constante de Plank. A interação de fótons com a matéria é independente da sua origem e dependentes apenas de sua energia quântica (EVANS, 1955; MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010).

As interações de fótons com a matéria apresentam um comportamento exponencial pois os fótons são absorvidos ou espalhados em um único evento no meio absorvedor, dependendo somente de suas energias e do meio material que eles atravessam e, desta forma, perdendo toda ou quase toda energia numa única interação, em contraste com as partículas carregadas que vão perdendo suas energias de maneira gradual através de interações sucessivas com os átomos do absorvedor. Os três principais processos para a operação e resposta dos detectores de fótons são: efeito fotoelétrico, efeito *Compton* e produção de pares.

2.3.2.1 Efeito Fotoelétrico

No efeito fotoelétrico, toda energia da radiação gama emitida pelo núcleo é transferida para um elétron orbital do átomo do meio absorvedor, ocorrendo absorção total da energia do fóton incidente, provocando a ejeção de fotoelétron com energia cinética, E_e^- , igual à diferença entre a energia do fóton incidente, $h\nu$, e a energia de ligação, W , do elétron orbital ao átomo:

$$E_e^- = h\nu - W \quad (19)$$

Figura 9 - Ilustração esquemática do efeito fotoelétrico

Fonte: EVANS, 1955.

O efeito fotoelétrico é predominante para baixas energias e para elementos de elevado número atômico, sendo proporcional a Z^5 . Devido à alta probabilidade de interação fotoelétrica com elementos de número atômico elevado, utiliza-se o chumbo, $Z = 82$, como material de blindagem de radiações eletromagnéticas.

2.3.2.2 Efeito Compton

O efeito Compton é uma interação entre o fóton e um elétron de energia de ligação baixa quando comparada com a energia do fóton incidente, ocorrendo a transferência de toda ou parte da energia incidente para os elétrons do meio originando os elétrons secundários.

A ionização ocorre por absorção parcial da energia do fóton, geralmente com elétrons das camadas mais externas do átomo. Desta forma, além do elétron livre (de

recuo) que carrega a parcela da energia incidente, $E=hv_0$, tem-se como resultado um fóton espalhado, $E_{\gamma'}=hv'$, que transporta a energia restante, (descontada a sua energia de ligação), em uma direção que pode ser diferente do fóton incidente.

Na Figura 10 está apresentada a ilustração do Efeito Compton, com ângulo de espalhamento, θ , que é formado entre as direções de propagação original e final do fóton espalhado. O elétron de recuo, por sua vez, adquire energia cinética, T , movendo-se em uma direção que forma um ângulo Φ , relativa à direção inicial do fóton incidente. As trajetórias do fóton, inicial e final, e do elétron espalhado são coplanares:

Figura 10 – Ilustração esquemática do efeito Compton

Fonte: EVANS, 1955.

Aplicando-se os princípios de conservação da energia e do momento para a colisão, deduz-se que (KNOLL, 2010):

$$E_{\gamma'} = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (20)$$

onde m_0 é a massa de repouso do elétron e c a velocidade da luz no vácuo. Pela equivalência entre massa e energia, tem-se que $m_0 c^2 = 0,511 \text{ MeV}$. A energia do elétron Compton é dada por:

$$E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} = h\nu \left(\frac{\left(\frac{h\nu}{m_0 c^2} \right) (1 - \cos \theta)}{1 + \left(\frac{h\nu}{m_0 c^2} \right) (1 - \cos \theta)} \right) \quad (21)$$

As energias dos elétrons espalhados na colisão Compton variam de zero ($\theta = 0^\circ$; $\phi = 90^\circ$) até um valor máximo, E_{cm} ($\theta = 180^\circ$; $\phi = 0^\circ$).

Dois casos extremos podem ser verificados com as equações acima:

- a) Colisão frontal do fóton, ou seja, $\theta = \pi$. Neste caso, o fóton é espalhado para trás na mesma direção de sua incidência inicial. Esta situação extrema representa o máximo de energia que pode ser transferido a um elétron. Eq. (22) e (23):

$$h\nu' |_{\theta=\pi} = h\nu \left(\frac{1}{1 + \left(\frac{2h\nu}{m_0 c^2} \right)} \right) \quad (22)$$

$$E_{e^-} |_{\theta=\pi} = h\nu \left(\frac{\frac{2h\nu}{m_0 c^2}}{1 + \left(\frac{2h\nu}{m_0 c^2} \right)} \right) \quad (23)$$

- b) Ângulo de espalhamento rasante do fóton, ou seja, $\theta \approx 0$. Nesta situação as equações 20 e 21 fornecem que $h\nu' \sim h\nu$ e $E_{e^-} \sim 0$. Nesta situação, o fóton espalhado tem aproximadamente a mesma energia do fóton incidente. Esta situação representa a menor energia que pode ser transferida ao elétron de recuo.

2.3.2.3 Produção de Pares

A produção de pares ocorre para energias acima de 1,022 MeV, que corresponde a duas vezes a massa de repouso do elétron ($2m_0 c^2$), necessária à criação do par nêutron/pósitron. O fóton incidente é totalmente absorvido no campo nuclear, surgindo um par nêutron-pósitron, com energia total, E_γ , igual a:

$$E_\gamma = h\nu = (E_{e^-} + m_0 c^2) + (E_{e^+} + m_0 c^2) \quad (24)$$

Onde :

E_γ é a energia do fóton incidente

E_{e^-} é a energia do nêutron

E_{e^+} é a energia do pósitron

$m_0 c^2 = 0,511 \text{ Mev}$, a massa de repouso do elétron

Figura 11 – Ilustração esquemática do processo de produção de pares no campo de um núcleo atômico.

Fonte: EVANS, 1955.

O pósitron após ser criado perde sua energia no meio absorvedor interagindo com um elétron do material, ocorrendo a aniquilação de ambos com o surgimento de dois fótons gama de 0,511 MeV em direções opostas, conforme ilustrado na Figura 12.

Figura 12 – Ilustração esquemática da aniquilação do pósitron no meio absorvedor

Fonte: www.epub.org.br/cm

Na Figura 13 está apresentada as regiões de energia onde há maior probabilidade de ocorrer cada um dos três processos mais relevantes de interação gama com a matéria descritos acima.

Figura 13 – Regiões de maior probabilidade de ocorrência dos processos mais relevantes de interação da radiação gama com o meio absorvedor.

Fonte: EVANS, 1955.

A linha cheia à esquerda do gráfico representa a energia para o qual a absorção fotoelétrica e espalhamento Compton são igualmente prováveis em função do número atômico do absorvedor. A linha mais à direita representa a energia para o qual o espalhamento Compton e produção de pares são igualmente prováveis. O processo de absorção fotoelétrica ocorre na região de baixas energias, até centenas de keV, e elevado número atômico (Z). O processo de produção de pares é dominante na região de altas energias, acima de 5 MeV e alto Z , e o espalhamento Compton ocorre na região de energias intermediárias (~ 1 MeV) e qualquer Z (EVANS, 1955; MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010).

2.4 Detectores de radiação

Detector de radiação é um dispositivo que colocado em um local onde exista um campo de radiação seja capaz de indicar a sua presença. Ao interagir com um meio sensível, a radiação promove transformações químicas ou físicas no meio absorvedor produzindo sinais luminosos ou elétricos que podem ser quantificados e de maneira indireta medir a radiação incidente. Os detectores utilizam dois processos de transferência de energia da radiação incidente ao meio absorvedor que são: excitação e ionização (KNOLL, 2010).

Vários tipos de detectores de radiação como: câmaras de ionização, detector semicondutor, contador proporcional e contador Geiger utilizam o processo de ionização produzidos pela passagem de partículas carregadas no meio. Se a radiação incidente for constituída de partículas carregadas como alfa ou elétrons, a ionização é produzida diretamente (ionização primária). Por outro lado, se a radiação incidente não tiver carga como os raios gama e nêutrons é necessário promover uma ionização indireta realizando algum tipo de reação no detector para produção de partículas carregadas, que por sua vez ionizarão os átomos do detector.

As radiações interagem de forma diferente com a matéria dependendo de seu tipo (eletromagnética, partículas carregadas leves, carregadas pesadas, nêutrons) e a escolha do detector apropriado depende do tipo de radiação que se quer medir, do conhecimento das características de respostas do detector a esse tipo específico de radiação, devendo ainda apresentar determinadas propriedades como boa reprodutibilidade, estabilidade, eficiência, resolução, precisão e exatidão.

A reprodutibilidade é definida como grau de concordância dos resultados obtidos em diferentes condições experimentais. Estabilidade é a qualidade do instrumento em conservar constantes as suas características durante o período de medidas. Eficiência é a capacidade de converter em sinais (pulsos) cada partícula incidente que interage com o volume ativo. Resolução em energia é a capacidade do detector de separar, identificando fotopicos de energias mais próximas. Precisão é o grau de concordância dos resultados entre si, indicando o quanto as medidas repetidas estão próximas umas das outras, mesmo que o resultado final não esteja correto, sendo definida pelo desvio padrão de uma série de medidas de uma mesma amostra. Exatidão representa o grau de proximidade dos resultados obtidos com o “valor verdadeiro” ou “valor de referência”, nos fornecendo um valor médio que é próximo do real, mesmo que o desvio padrão seja elevado.

2.4.1 Detectores Cintiladores

Alguns materiais quando excitados pela absorção de energia proveniente de radiação eletromagnética sofrem um processo de desexcitação por emissão de luz que é denominado cintilação. Os materiais que apresentam estas propriedades podem ser empregados como detectores de radiação.

Estes detectores são constituídos por um material cintilador acoplado a um tubo fotomultiplicador. A radiação incidente interage com o material cintilador, excitando-o, que retornando ao seu estado fundamental emite luz com comprimento de onda no espectro

visível porém, a quantidade produzida é geralmente muito pequena, não sendo possível quantificá-la diretamente. Por esta razão, ao material cintilador é acoplado opticamente um dispositivo fotomultiplicador, onde a luz produzida no cintilador é detectada, multiplicada e os sinais luminosos convertidos em sinais elétricos de saída cuja amplitude é proporcional à energia depositada no meio.

A válvula fotomultiplicadora é um dispositivo fundamental para utilização dos detectores de cintilação pois transforma os sinais luminosos produzidos pela radiação em impulsos elétricos com intensidade adequada para serem processados. O fotocatodo, que é acoplado ao cristal detector onde ocorre a cintilação, transforma em elétrons os sinais luminosos originados pela interação da radiação incidente com o cristal. Estes elétrons produzidos originalmente no fotocatodo são multiplicados por meio de uma série de dinodos consecutivos, também fotossensíveis e conectados a potenciais crescentes, sendo multiplicados por um fator de $10^5 - 10^7$. Os impulsos (sinais) elétricos produzidos alcançam intensidades convenientes ao processamento em sistemas de contagem ou de espectroscopia. Este processo é ilustrado na Figura 14. A quantidade de luz produzida no cintilador e o consequente número de elétrons multiplicados dependem da energia da radiação incidente, sendo possível quantificar a sua intensidade, bem como a energia depositada no meio cintilador.

As vantagens do contador de cintilação são: tempo morto baixo, grande durabilidade e alta eficiência para detecção de raios γ devido a elevada densidade dos cintiladores sólidos e líquidos. (LEO, 1987; KNOLL, 2010).

Figura 14 - Diagrama esquemático de um detector de cintilação

Fonte: KNOLL, 2010

Um material cintilador ideal deve possuir as seguintes propriedades:

- 1) Converter a energia cinética da radiação ionizante em luz detectável com alta eficiência de cintilação. Esta conversão deve ser linear, ou seja, a quantidade de luz deve ser proporcional à energia depositada.
- 2) Transparência ao comprimento de onda de sua própria emissão.
- 3) Tempo de decaimento da luminescência pequeno da ordem de ($\approx 10^{-9}$ segundos).
- 4) Índice de refração próximo ao do vidro (1,5) para permitir acoplamento eficiente da luz de cintilação.

Os detectores cintiladores podem ser divididos em inorgânicos como os cristais de NaI(Tl), CsI(Tl), CsI(Na), Li(Eu), ZnS(Ag) e CaF₂(Eu) e orgânicos, que são hidrocarbonetos compostos por anéis de benzeno, sendo sólidos como os cintiladores plásticos de NE102A, NE110 e líquidos como PPO, POPOP e P-terfenil. (LEO, 1987; KNOLL, 2010).

A maioria dos cintiladores inorgânicos são cristais constituídos de iodetos alcalinos contendo uma pequena concentração de impureza tais como os cristais de NaI(Tl), CsI(Tl), CsI(Na) e LiI(Eu). O elemento entre parênteses é a impureza ou ativador, que são os agentes responsáveis pelo aumento da luminescência do cristal (KRANE, 1988; KNOLL, 2010). Com o objetivo de aumentar a luminescência e diminuir o tempo de emissão de luz, uma pequena quantidade de impureza (ou ativador) é introduzida no cristal, sendo criados sítios especiais na rede cristalina na região da banda proibida, como mostra a Figura 15. Os elétrons da banda de valência ao receberem energia suficiente da radiação ocupam os níveis de energia criados pela presença do ativador. Ao se desexcitarem e retornarem aos níveis de valência, os elétrons emitem a energia referente à diferença dos níveis na forma de luz. (MARMIER e SHELDON, 1969; KNOLL, 2010).

Figura 15 – Estrutura esquemática de bandas de energia em um cintilador cristalino com introdução de impureza (ativador)

Fonte: KNOLL, 2010.

O cristal de iodeto de sódio NaI(Tl) é ativado com 0,1 % de Tálho (Tl), sendo um dos cristais inorgânicos mais utilizados para detecção de radiação gama e X por apresentar elevada eficiência de detecção. Esse tipo de cristal é higroscópico devendo ser mantido hermeticamente selado. A introdução dos átomos de Tálho como impurezas no cristal é também conhecida como dopagem, com a formação de níveis discretos de energia na região da banda proibida que são denominados centros de ativação (ou armadilhas *-trap*).

2.4.2 Detector Proporcional a Gás

Alguns detectores podem fornecer informação sobre a energia da radiação pelo fato da quantidade de ionização produzida pela radiação no detector ser proporcional à energia depositada no seu volume sensível.

Os detectores proporcionais são operados no modo pulso e se baseiam no fenômeno da multiplicação de íons no gás para amplificar o número de íons originais criada pela partícula incidente. Este detector é conhecido como proporcional pois o pulso elétrico gerado é um múltiplo da interação ocorrida no gás. Os fótons e as partículas emitidas pelo radionuclídeo ionizam as moléculas do gás e os elétrons livres formados são facilmente acelerados atingindo a energia cinética necessária a geração de novas ionizações. Os elétrons liberados nas ionizações secundárias também são acelerados e passam a contribuir na multiplicação do número de pares de íons, gerando um efeito cascata conhecido por Avalanche de Townsend. Essa avalanche termina quando todos os elétrons livres são coletados no anodo, sendo a corrente proporcional à energia da partícula incidente, uma vez que o detector é operado na região proporcional (Figura 16), onde o sinal inicial é

multiplicado por um fator de 10^2 a 10^4 vezes dependendo do gás e da tensão aplicada. O detector é preenchido com uma mistura de um gás nobre e outro gás que melhorará a eficiência do detector, sendo a mistura de Argônio 90% e metano 10%, conhecido como gás P10, a mais empregada.

O efeito de multiplicação no gás é consequência da aplicação de um campo elétrico suficientemente intenso. Para valores baixos do campo a mobilidade dos íons e elétrons não atingem a energia de ionização. O limiar de campo elétrico necessário para tornar a energia cinética dos elétrons livres (entre colisões) grande o suficiente para gerar novos pares de íons é da ordem de 10^6 V/m. Estes detectores podem ser aplicados em medidas de espectroscopia de raios X, elétrons de alta e baixa energia e radiação alfa. Também são utilizados na detecção de nêutrons utilizando reações nucleares do tipo (n,p) e (n, α) (KNOLL, 2010).

A probabilidade de interação da radiação com o gás, resultando na formação de pares de íons, varia com o campo elétrico (diferença de potencial) aplicado ao gás dentro do volume sensível. A Figura 16 mostra a variação do número de pares de íons em relação à variação do campo elétrico para duas radiações de mesmo tipo e energias diferentes. Pode-se separar o intervalo de variação do campo elétrico em seis regiões, pelas características específicas de geração e coleta de carga.

Figura 16 - As diferentes regiões de operação dos detectores a gás

Fonte: KNOLL, 2010.

Os detectores proporcionais são construídos na maior parte das vezes no formato cilíndrico, porém alguns tipos especiais de detectores proporcionais são de grande utilidade para usos específicos onde a sua geometria interna é de grande importância. Os detectores em geometria 2π e 4π são os mais apropriados para uso em metrologia das radiações. Nas ilustrações das Figuras 17 e 18 nota-se que os detectores 4π 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. A vantagem da contagem da fonte interna é que não há janelas entre o volume sensível do contador e a fonte radioativa, o que minimiza os efeitos de absorção para as radiações de baixas energias, possibilitando assim medidas mais eficientes nesta faixa de energia, ou de baixo poder de penetração (KNOLL, 2010).

Figura 17 - Esquema dos contadores proporcionais em geometria 2π e 4π .

Fonte: KNOLL, 2010.

Figura 18- Esquema em corte transversal e vista frontal do contador proporcional 4π

Fonte: KNOLL, 2010.

2.4.3 Detector Semicondutor

Os detectores semicondutores tornaram-se disponíveis no começo dos anos 1960, onde o meio a ser ionizado pela radiação incidente é um cristal semicondutor. Os princípios de detecção de semicondutores são semelhantes aos detectores a gás, porém diferenciando-se no aspecto da formação de cargas elétricas que neste dispositivo é produzido por pares elétron-lacuna (*holes*, ou vacância na banda de valência), enquanto que nas câmaras de ionização a corrente elétrica é conduzida por elétrons e íons positivos. Devido a esta semelhança, os detectores semicondutores são chamados de câmara de ionização de estado sólido e também de detectores de estado sólido (KNOLL, 2010).

De maneira geral, os semicondutores mais utilizados como detectores são o germânio e o silício. Os de silício são preferencialmente utilizados em espectroscopia de partículas carregadas enquanto que os detectores de germânio na espectroscopia de raios gama. Nos materiais cristalinos há três bandas de energia em relação à condutividade de elétrons: 1) banda de valência, que possui energia mais baixa, E_v , onde os elétrons normalmente se encontram em um material não excitado (estado fundamental). 2) banda proibida onde os elétrons não são permitidos e c) banda de condução que possui energia maior, E_c , onde os elétrons podem se movimentar com relativa liberdade pelo material. Se a largura (em energia) da banda proibida for maior que 5 eV, o material é considerado um isolante e quando a largura é da ordem de 1 eV, o material é um semicondutor. Na Figura 19 está ilustrada a estrutura de bandas num material isolante e condutor, onde E_g é largura em energia da banda proibida (*gap*).

Figura 19 – Ilustração da estrutura de bandas para energia de elétrons nos materiais isolantes e nos semicondutores

Fonte: KNOLL,2010

A Figura 20 apresenta um esquema do princípio básico de funcionamento de um detector semiconductor onde a energia depositada no cristal excita os elétrons da banda de valência (BV) promovendo-os à banda de condução (BC), formando-se pares elétron/lacuna. Um cristal semiconductor é constituído por uma rede cristalina que permite a formação de bandas de energia para os elétrons do material. Pode-se distinguir dois tipos de bandas separadas por um gap de energia (E_g), que corresponde num cristal puro a uma região que é proibida aos elétrons. A banda inferior é chamada de banda de valência onde os elétrons se encontram ligados e ocupando todos os níveis de energia permitidos. A segunda banda é chamada de condução onde os elétrons podem se mover livremente através do cristal.

Figura 20 – Representação esquemática do princípio de funcionamento de um detector semiconductor

Fonte: www.ianalitica.wordpress.com

Em ausência de excitação térmica a BV se encontra totalmente preenchida e a BC completamente vazia. Quando o semicondutor encontra-se numa temperatura diferente de zero, os elétrons da BV podem ganhar energia térmica suficiente para se deslocar para a BC, atravessando a banda proibida. Um elétron da BV é promovido para a BC por um mecanismo de excitação térmica devido à passagem de uma radiação que produzirão os pares elétrons/lacuna no cristal, deixando uma vacância na BV. Tanto o elétron na BC como a lacuna na BV são chamados de portadores de carga. A passagem da radiação por um material semiconductor com estruturas de bandas origina um grande número de pares elétron/lacuna ao longo da trajetória da partícula, que são coletados por meio de um campo elétrico externo aplicado ao material, gerando um pulso de corrente proporcional à energia original depositada. A energia média gasta pela radiação para criar um par elétron-lacuna tem o nome de energia de ionização, ϵ . Estudos mostram que o valor de ϵ depende da natureza da radiação incidente. Uma grande vantagem dos detectores de estado sólido é o baixo valor de ϵ para criar um par elétron/lacuna, (sendo da ordem de 3,0 eV e 3,5 eV, para os detectores de Germânio e de Silício, respectivamente), comparado com a energia para criar um par de elétron-íon positivo num detector a gás (da ordem de 30 eV). Ou seja, num cristal de silício por exemplo, são produzidas aproximadamente 8 vezes mais cargas elétricas por um fóton incidente do que num gás argônio de uma câmara de ionização. Este número maior de pares, criado nos detectores semicondutores, propiciam outras vantagens adicionais que são: menor flutuação estatística e pequena incerteza nas medidas, alta resolução na determinação da energia da radiação incidente e tamanhos compactos de detectores (ZEVALLOS-CHÁVEZ, 2003; KNOLL, 2010).

O detector HPGe é construído geralmente na geometria cilíndrica ou coaxial para utilização em espectrometria gama, permitindo obter volumes maiores que são importantes em espectrometria. Este detector é muito utilizado para medidas de nuclídeos emissores gama de baixa atividade, de baixa energia do tipo raios X e na identificação de diversos radioisótopos presentes nos materiais, numa ampla faixa de energia de alguns keV a 10 MeV. Existem vários modelos comerciais com dimensões diversas, eficiência de detecção de diversos valores e configurações do tipo axial, horizontal, tipo poço e até portáteis. A principal característica deste detector é sua excelente resolução em energia quando aplicado em espectroscopia gama, permitindo a identificação de um grande número de fótons emitidos com energias relativamente próximas. (KNOLL, 2010).

A grande superioridade em resolução dos detectores semicondutores permite uma nítida distinção de vários fotopicos, em contraste com o detector de NaI (TI) (JUNIOR, 2009).

3 MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo são descritas as características dos dois radionuclídeos, a revisão bibliográfica, as metodologias empregadas no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e no sistema HPGe, reunindo teoria e técnicas utilizadas nas medidas de coincidências e de espectrometria gama.

3.1. Características dos dois radionuclídeos selecionados

Os radionuclídeos adequados para aplicação na área de Medicina Nuclear, seja para fins terapêuticos ou de diagnóstico é baseada em suas características físicas, como por exemplo, no tipo e energia da radiação emitida, na meia-vida e química adequada à captação pelos tecidos a serem analisados e nuclídeos filhos estáveis.

Os radiofármacos são fármacos que tem na sua composição um radionuclídeo, sendo utilizados em Medicina Nuclear para diagnóstico e terapia de várias doenças. As características físico-químicas do radiofármaco determinam a sua farmacocinética, isto é, a sua fixação no órgão alvo, metabolização e eliminação do organismo, enquanto que as suas características físicas determinam a aplicação do composto em diagnóstico ou terapia. Para aplicações em diagnóstico, utilizam-se radiofármacos que apresentam na sua constituição radionuclídeos emissores de radiação γ ou emissores de pósitrons (β^+), já que o decaimento destes radionuclídeos dá origem a radiação eletromagnética penetrante, que consegue atravessar os tecidos e pode ser detectada externamente, possibilitando a formação de imagens. Os radiofármacos para terapia deve incluir na sua composição um radionuclídeo emissor de partículas ionizantes (α , β^- ou elétrons Auger), pois sua ação se baseia na destruição seletiva de tecidos, promovendo a destruição das células tumorais. A captação do radiofármaco no órgão alvo deve ser seletiva para minimizar os efeitos secundários, que são uma das grandes desvantagens da radioterapia externa, em que é difícil controlar a dose de radiação fornecida, especialmente para tratamento de metástases disseminadas. Neste caso, os tecidos saudáveis podem ficar mais expostos a elevadas doses de radiação, o que pode aumentar a incidência de leucemias e tumores secundários. (OLIVEIRA et al., 2006).

A emissão de raios gama, que acompanha a emissão de partículas carregadas, pode ser utilizada na aquisição de imagens sempre que a sua energia for adequada, (>80 keV), constituindo uma vantagem pois permite visualizar a distribuição *in vivo* do radiofármaco que está sendo utilizado na terapia. Os raios γ com energia inferior a 80 keV não são adequados porque são absorvidos pelos tecidos, não sendo detectados exteriormente (VOLKERT et al., 1991; OLIVEIRA et.al, 2006; QUAIM, 2012, LIBERAL, 2013; ASABELLA et al., 2014)

O ^{64}Cu , devido ao seu esquema de decaimento característico, (Figura 21), apresenta grande versatilidade para se ligar a vários tipos de biomoléculas produzindo diversos radiofármacos e com a possibilidade de ser utilizado em diagnóstico de tumores em vários órgãos por PET, este radionuclídeo vem sendo intensivamente estudado por diversos laboratórios, podendo ser produzido tanto em ciclotron como em reatores nucleares por diferentes reações e com atividades específicas adequadas para fins terapêuticos, (GBq/ μg).

As moléculas marcadas com este radionuclídeo vem despertando grande interesse como um novo e promissor radiofármaco emissor de pósitron em função de sua meia vida curta (12,7 horas) e por decair por meio de três processos: emissão de pósitron, de elétrons (β^-) e por captura eletrônica (que está associado à emissão de elétrons Auger), estas características vem contribuindo para uma maior eficiência do ^{64}Cu em determinados tratamentos onde este radiofármaco é depositado no núcleo de uma célula maligna, ocorrendo maior probabilidade de cura através da irradiação contínua de tumores com diâmetro entre 2 a 3 mm.

As radiações gama que são produzidas no decaimento por captura eletrônica e por aniquilação de pares (ramo β^+), com energias de 1345,7 keV (0,5%) e de 511 keV, respectivamente, fazem com que o ^{64}Cu seja apropriado para realizar além de diagnóstico por imagens, tratamentos de radioterapia interna seletiva *in vivo* que consiste na colocação de fontes radioativas sólida ou líquida dentro do organismo, diretamente ou próximo à área do tumor, ajustando a dose prescrita para o seu tamanho e forma, para minimizar a dose no tecido saudável adjacente. Isto permite ao radioterapeuta a prescrição de uma dose mais elevada no volume alvo, com um impacto mínimo sobre os tecidos normais. A análise *in vivo* é importante para o estudo de fenômenos dinâmicos onde se exige que as células mantenham as suas atividades vitais. (BLOWER et al., 1996; WILLIAMS et al., 2005; ANDERSON e FERDANI, 2009; ASABELLA et al., 2014; BERGERON et al., 2018).

O ^{166}Ho , por sua vez, é também um radionuclídeo muito promissor para ser utilizado em radioterapia interna seletiva no tratamento de diversos tipos de câncer, especialmente nos tumores hepáticos. Este nuclídeo tem uma meia vida de 26,8 horas, é um emissor β^- , ($E_{\max} = 1,84 \text{ MeV}$), com um alcance no tecido mole de 8,7 mm e de 3,8 mm em tecidos densos (ossos). É também um emissor de fótons, (81 keV, 6,6% e 1379,4 keV, 0,93%), sendo apropriado para a aquisição de imagens. Devido a estas propriedades, este radionuclídeo vem sendo pesquisado por apresentar potenciais aplicações em diagnóstico e radioterapia interna, com máxima irradiação e diminuição de efeitos de toxicidade nos tecidos saudáveis adjacentes (VOLKERT et al., 1991; NIJSEN et al., 2001; BREITZ et al., 2006; COSTA, 2008; LIBERAL, 2013; RANJBAR et al., 2015; ZOLGHADRI et al., 2015; TEHRANI et al., 2016).

Atualmente, no tratamento de tumores hepáticos é utilizada a terapia com microesferas marcadas com ^{90}Y , porém a radioterapia interna seletiva com microesferas poliméricas marcadas com ^{166}Ho vem apresentando resultados promissores, sendo uma nova alternativa para o tratamento destes tumores. Microesferas poliméricas marcadas com ^{166}Ho possuem diversas vantagens que o tornam um radionuclídeo favorável a esta terapia, em comparação com o ^{90}Y (NIJSEN et.al., 2001; VOLKERT et al., 1991; COSTA, 2008; QAIM, 2012).

a) A principal razão é que a seção de choque de captura de nêutrons do ^{165}Ho é muito maior em relação à seção de choque do ^{89}Y ($^{165}\text{Ho} = 65\text{barns}$; $^{89}\text{Y} = 1.3 \text{ barns}$). Isto permite a produção de altas atividades de ^{166}Ho mesmo em reatores nucleares de pesquisa.

b) A energia beta menos do ^{166}Ho ($E_{\beta}=1,74 \text{ e } 1,85 \text{ MeV}$, com $I_{\beta} = 48,7\%$ e 50%, respectivamente) é menor que a do ^{90}Y (2,28 MeV, com $I_{\beta} = 99,98\%$), minimizando a dose recebida por tecidos sadios.

c) O ^{166}Ho é um emissor gama de meia vida curta ($E_{\gamma}= 81 \text{ keV}$, $I_{\gamma} = 6,6\%$), com possibilidade de formação de imagens, não sendo possível com o ^{90}Y pelo fato deste radionuclídeo não ser um emissor gama impossibilitando assim, a avaliação da biodistribuição das microesferas marcadas.

O custo das microesferas com ^{166}Ho é menor em relação as do ^{90}Y . Existem dois tipos de microesferas marcadas com ^{90}Y no mercado mundial, porém, não é possível produzi-los no Brasil, sendo que a única opção é a importação deste material, o que envolve maior custo em relação aos radionuclídeos produzidos em território brasileiro. Este custo reduz o número de possíveis tratamentos tendo em vista as condições sociais do

nosso país. O ^{90}Y pode ser também obtido através do gerador de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, que é produzido no Brasil, porém, neste caso o ^{90}Sr também é importado e como o ^{90}Y , não é possível produzi-lo em reatores nucleares nacionais, mesmo com a possibilidade de aumento da potência do reator nuclear IEA-R1. (COSTA, 2008). Os geradores permitem obter um radionuclídeo de meia vida curta a partir de um nuclídeo de meia-vida longo. As propriedades químicas dos dois radionuclídeos (nuclídeo “pai” e “filho”), tem que ser distintas para que sejam facilmente separados (SAHA, 1998).

O ^{166}Ho é possível de ser produzido com atividade necessária para uma dose radioterápica (GBq/g) utilizando o reator nuclear IEA-R1 (IPEN-CNEN/SP). Por outro lado, não é possível produzir os radionuclídeo ^{90}Y no Brasil. (COSTA, 2008).

3.1.1 ^{64}Cu

O ^{64}Cu decai com 17,52 % pela emissão de pósitrons para o estado fundamental do ^{64}Ni , 38,48 % por emissão beta menos para ^{64}Zn , com 43,53 % pelo processo de captura eletrônica para o ^{64}Ni e 0,4749 % pelo processo de captura eletrônica seguido da emissão gama de 1345,7 keV. As duas coincidências possíveis são: captura eletrônica seguido de emissão de gama de 1345,7 keV e aniquilação do pósitron com emissão de raios gama de 511 keV. Na natureza são encontrados dois isótopos estáveis: ^{63}Cu e ^{65}Cu , com abundância isotópica de 69,15% e 30,85%, respectivamente (BÉ et al., 2012; ASABELLA et al., 2014).

Um dos maiores desafios na produção de radionuclídeos para fins terapêuticos é obter elevadas atividades específicas, com alta produtividade (rendimento) e baixo custo. Atividade específica é a atividade por unidade de massa do composto marcado, ou dos isótopos presentes, expressando-se em Bq/unidade de massa. Atividade específica elevada é quando se obtém uma grande quantidade de radioatividade com o mínimo possível de isótopos não radioativos incorporados (que não se ativaram).

Os radioisótopos de cobre podem ser produzidos em ciclotron ou num reator nuclear utilizando alvos de Cu, Co, Ni e Zn. Os diferentes métodos de produção originam produtos diferentes em relação a pureza química, ao rendimento (produtividade) e atividade específica final. A produção em larga escala de radioisótopos emissores de pósitron para fins radioterápicos e/ou diagnóstico é realizada em ciclotron devido ao menor custo, alto rendimento (produção) e elevada atividade específica final obtida (47,4 a 474 GBq/ μmol). com feixes de prótons acima de 10 MeV e massa do núcleo alvo entre 10 a 50 mg. A reação mais utilizada é $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$, com ^{64}Ni enriquecido (> 95%) e tendo como

possíveis impurezas os radionuclídeos ^{55}Co , ^{61}Co , ^{60}Cu e ^{61}Cu (BLOWER et al., 1996; AVILA-RODRIGUEZ et al., 2007; REBELES et al., 2009; ALLIOT et al., 2011; QAIM, 2012; MANRIQUE-ARIAS e AVILA-RODRIGUEZ, 2014; ASABELLA et al., 2014; OHYA et al., 2016).

O ^{64}Cu produzido em reatores nucleares resulta na produção de radioisótopos de baixa a moderada atividade específica, ($< \text{MBq/g}$), por ativação direta através da reação $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$ com nêutrons térmicos e Cu natural, com possível impureza de ^{67}Cu , e com elevada atividade específica pela reação $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$, com nêutrons rápidos (energias acima de 1,8 MeV) e núcleo alvo de ^{64}Zn enriquecido a 99,9%, porém apresentando baixa produtividade (rendimento) e possíveis impurezas de: ^{67}Cu , ^{63}Zn e ^{65}Ni (WILLIAMS et al., 2005; BÉ et al., 2012; QAIM, 2012; ASABELLA et al., 2014).

O ^{64}Cu , (secção de choque de 4,5 barns), utilizado no presente trabalho com baixa atividade específica (kBq/g), adequada para pesquisas em medidas com sistemas de coincidências, foi produzido pela reação $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$ no reator IEA-R1, num fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $6.10^{13} \text{ n/cm}^2.\text{s}$. e tempo de irradiação de 8 horas.

Na Figura 21 está apresentada o esquema de decaimento do ^{64}Cu .

Figura 21- Esquema de decaimento do ^{64}Cu

Fonte: BÉ et al., 2012.

3.1.1.1 Revisão da Literatura do ^{64}Cu

Com o objetivo de alcançar sempre resultados mais exatos e precisos, há uma necessidade contínua de melhoria da qualidade dos parâmetros nucleares através de medidas absolutas.

Os trabalhos realizados relacionados à padronização do ^{64}Cu e medidas da intensidade da radiação gama para a energia de 1345,7 keV, foram:

Christmas et al., 1983: foi utilizado o sistema de coincidência $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma$, com detector de cintilação líquida. Neste caso, a variação da eficiência é obtida por meio da variação da luminosidade emitida, para isso podem ser utilizados filtros com diferentes graus de cinza ou agentes químicos que são adicionados à solução cintiladora para modificar o grau de *quenching* (absorção de luminosidade) e um espectrômetro Ge(Li) calibrado para obter a intensidade gama. O valor obtido foi $I_\gamma = 0.471(11)$.

Kawada, 1986: foi utilizada a técnica de coincidência $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$, com contador proporcional e um detector NaI(Tl). A intensidade de emissão do fóton foi medida com um espectrômetro de HPGe calibrado. I_γ obtido = 0.487 (20).

Quaim et al., 2007: utilizou um sistema $2\pi\beta(\text{PC})$ previamente calibrado com emissores beta puros, tendo considerado uma eficiência de detecção beta absoluta de $(40\pm 2)\%$. e para espectrometria gama um detector HPGe calibrado. I_γ obtido = 0.543(3), sendo o único valor que não houve concordância com os demais autores.

Wanke et al., 2010: a atividade absoluta da solução de ^{64}Cu foi medida por sistema de coincidência $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$, com contador proporcional, e por coincidência $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma$, com detector de cintilação líquida, neste caso a variação da eficiência foi obtida por meio da variação da luminosidade emitida, para isso foi utilizado o agente químico nitro metano adicionado à solução cintiladora para modificar o grau de *quenching* (absorção de luminosidade) e espectrometria gama utilizando detector HPGe calibrado. I_γ obtido = 0.474 (5).

Luca et al., 2012: foi utilizado o método de coincidências $4\pi(\text{PC})-\gamma$. A probabilidade absoluta de emissão do fóton foi realizada com detector HPGe calibrado. $I_\gamma = 0.481(17)$.

Amiot, 2012: utilizou o sistema de coincidência ($4\pi\beta$ (LS)- γ) e a intensidade de emissão gama foi determinada com detector HPGe calibrado. I_γ obtido = 0.472 (12).

Bé et al., 2012, (Laboratório CMI, República Checa): utilizou a técnica de coincidência $4\pi\beta$ (PC)- γ com contador proporcional e dois detectores NaI(Tl). As medidas de intensidade do fóton foram feitas com detector HPGe calibrado. I_γ = 0.476 (6).

Bé et al., 2012: Quatro laboratórios nacionais, (LNE-LNHB, França; PTB, Alemanha; CMI, República Checa; NPL, Reino Unido e IFIN-HH, Romênia), mediram a atividade do Cu-64 e a intensidade de emissão gama como parte de uma comparação internacional, Projeto DDEP (*Decay Data Evaluation Project*). Foram utilizados o sistema de coincidência $4\pi\beta$ (PC)- γ com dois detectores NaI(Tl) e o sistema de coincidência 4π (LS)- γ , com contador de cintilação líquido (LS), utilizando 3 coquetéis diferentes. As medidas de intensidade gama foram realizadas com detector HPGe calibrado. O valor médio obtido foi I_γ = 0.4748 (33), que é o valor adotado a partir de 2011.

Havelka e Sochorová, 2014: A atividade absoluta foi determinada com o método de extrapolação da eficiência aplicado ao sistema de coincidências $4\pi\beta$ (PC)- γ . A padronização foi realizada utilizando um sistema de coincidências por software que é um método digital para determinação da atividade primária de um radionuclídeo, simplificando a escolha dos parâmetros de coincidências ideais. Este autor mediu a atividade absoluta, mas não a intensidade gama da energia de 1345,7 keV.

Pibida et al., 2017: Recentemente o NIST completou a padronização primária da solução $^{64}\text{CuCl}_2$ utilizando o método $4\pi\beta$ (LS)- γ e para a medida da intensidade de emissão da linha gama principal no esquema de decaimento do ^{64}Cu foi utilizado o detector de germânio hiperpuro HPGe. O valor obtido foi I_γ = 0.469 (4).

Cada grupo ou laboratório utilizou diferentes sistemas de aquisição de dados e de programas (software) de análise próprios, obtendo resultados concordantes entre si, exceto QAIM (2007).

. As dificuldades na padronização deste radionuclídeo estão associadas à baixa intensidade de emissão para a transição gama de 1345,7 keV (0,47%) e à ausência de transições gama após o decaimento beta negativo.

3.1.2 ^{166}Ho

O radionuclídeo ^{166}Ho se desintegra unicamente por emissão de β^- para os estados excitados do ^{166}Er , com emissão subsequente de vários fótons gama e de raios X, com uma energia máxima de radiação β^- de 1.854,5 keV, energia de radiação gama de 80,57 keV (6,55%), de 1379,45 keV (0,93%) e meia-vida de 26,8 horas. (BÉ et al., 2011). Além disto, sendo emissor de fótons de baixa energia e intensidade ($E_\gamma=80,57$ keV; $I_\gamma=6,55\%$), é também apropriado para aquisição de imagens e por ser um emissor beta de alta energia possui um elevado poder de penetração no tecido (máximo de 8,7 mm e médio de 2 a 3 mm) (NIJSEN et al., 2001; BREITZ et al., 2006; COSTA, 2008; LIBERAL, 2013; RANJBAR et al., 2015; TEHRANI et al., 2016).

As três coincidências possíveis são: radiação beta de 1773,9 keV seguido de emissão de gama de 80,57 keV, radiação beta seguido de emissão gama de 1379,45 keV e elétron de conversão seguido de raios X característico.

Muitas aplicações do ^{166}Ho , (terapias ósseas, tumores hepáticos com microsferas marcadas, tratamento de mieloma múltiplo), não exigem elevada atividade específica e, portanto, pode ser produzido em quantidade suficiente para produção de doses radioterápicas em reatores nucleares por ativação direta de nêutrons térmicos.

O hólmio-165 tem uma abundância de 100% na natureza e seção de choque de 64 barns, que permite produzir o isótopo ^{166}Ho com uma atividade de 344 mCi no reator IEA-R1, em 60 horas de irradiação num fluxo de $4,0 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, o suficiente para produção de doses terapêuticas. (COSTA, 2008).

A produção de ^{166}Ho para este trabalho foi realizada no reator IEA-R1 através da reação $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$, num fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $1.10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

Os principais modos de produção são: $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$ (reatores nucleares com nêutrons térmicos), $^{165}\text{Ho}(d, p)^{166}\text{Ho}$ e $^{165}\text{Ho}(d, pg)^{166}\text{Ho}$ (aceleradores). (BÉ et.al., 2011).

Na Figura 22 está apresentada o esquema de decaimento do ^{166}Ho

Figura 22 – Esquema de decaimento do ^{166}Ho

Fonte: BÉ et al., 2011

3.1.2.1 Revisão da Literatura do ^{166}Ho

Na literatura são encontrados trabalhos antigos relacionados às medidas de atividade relativa e da probabilidade de emissão gama por decaimento relativa do ^{166}Ho , utilizando detectores semicondutores de Ge-Li ou câmaras de ionização (SCHONFELD e DERSCH, 2011), porém não há na literatura medidas de atividade absoluta e das intensidades de transição gama utilizando o método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ com detector proporcional, empregando a técnica de extrapolação linear da eficiência descritos previamente por diversos autores (CAMPION, 1959; MOURA, 1969; BAERG, 1973) e associada a um sistema de aquisição de dados por software (TOLEDO, 2008, 2009).

Os trabalhos encontrados de medidas de atividade e da intensidade de transição gama absoluta para 80,57 keV, que é a energia gama mais intensa do ^{166}Ho , foram:

Sekine e Baba, 1981: O isótopo de ^{166}Ho foi produzido pelo decaimento do ^{166}Dy , que por sua vez foi produzido no reator nuclear utilizando o método de ativação, através da reação de captura dupla de nêutrons no isômero ^{164}Dy . O ^{166}Dy produzido possui uma meia vida de 81,6 h, decai para o ^{166}Ho que possui uma meia-vida de 26,8 h. Na fonte de $^{166}\text{Dy} - ^{166}\text{Ho}$, quase em equilíbrio transiente, foram realizadas medidas de radiação beta com um contador proporcional a gás fluente para determinar a atividade absoluta desta fonte. A probabilidade de emissão gama de 82,5 keV do radioisótopo ^{166}Dy e de 80,6 keV do decaimento do núcleo-filho ^{166}Ho , foram medidas com um detector de Ge(Li). O valor da intensidade gama obtido para o pico de 80,57 keV do ^{166}Ho foi de $(6,82 \pm 0,12) \%$.

Coursey et al., 1994: a medida da atividade absoluta foi realizada utilizando um detector de cintilação líquida aplicando o método CIEMAT/NIST. Este método foi desenvolvido nos anos 80, nos laboratórios nacionais de metrologia CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas, da Espanha) e NIST (National Institute of Standards and Technology, dos Estados Unidos), por meio do qual é possível a padronização de qualquer radionuclídeo beta emissor apenas em função de um padrão de ^3H , que é um emissor beta puro com energia máxima de 18,7 keV. O trítio foi escolhido como traçador por possuir energia beta máxima baixa e ser obtido em solução aquosa ($^3\text{H}_2\text{O}$), o que o torna mais sensível aos efeitos dos agentes de *quenching*. Este método é aplicado em sistemas de cintilação líquida equipados com duas fotomultiplicadoras

operados em coincidência. A intensidade de emissão para fótons de 80,57 keV foi obtida com um espectrômetro de Ge(Li) calibrado. O valor obtido foi $I_\gamma = (6,55 \pm 0,07) \%$.

3.2 . Método de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$

A padronização de radionuclídeos que emitem radiações distintas e simultâneas tais como $\beta\text{-}\gamma$, $\text{RX-}\gamma$, $\alpha\text{-}\gamma$, etc., pode ser realizada através da aplicação do método de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ que consiste em registrar as taxas de contagens de eventos correlacionados (responsáveis por coincidências). São medidas as taxas de emissões β (N_β), de transições γ (N_γ) e de coincidência, N_c , que são os eventos detectados simultaneamente. Denomina-se eventos simultâneos quando o período de transição ao nível fundamental for desprezível (da ordem de ns) comparado com os tempos de resolução eletrônicos. Essas taxas de contagens provêm de um sistema de detecção apropriado que utilizam módulos eletrônicos convencionais ou digitais para efetuar o registro das contagens dos eventos β , γ e de coincidências, envolvendo para isso o uso de dois detectores diferentes, um para cada tipo de radiação emitida e os eventos coincidentes registrados num sistema de aquisição apropriado (MARMIER e SHELDON, 1969; KRANE, 1988; KNOLL, 2010).

O Método de Coincidências é considerado um método primário ou absoluto de medida de atividade utilizado na padronização de fontes radioativas que se desintegram pela emissão simultâneas de duas radiações distintas. A determinação de atividade utilizando este método pode ser realizada com grande exatidão dependendo apenas de grandezas observáveis e não da eficiência de detecção e dos parâmetros do esquema de desintegração. O formalismo teórico e aplicação deste método foram descritos por vários autores. (CAMPION, 1959; HOUTERMANS, 1962; BAERG, 1966; BAERG, 1967; MOURA, 1969; BAERG, 1973).

Alguns tipos especiais de detectores proporcionais são de grande utilidade para usos específicos. Um deles é o detector 4π onde a fonte é totalmente inserida dentro do volume sensível, permitindo uma eficiência de contagem de praticamente 100% para radiações de baixa energia, da ordem de até dezenas de keV.

O sistema de coincidências é constituído por um contador proporcional a gás fluente ou pressurizado, em geometria 4π , para a detecção de partículas beta, elétrons Auger, raios X ou partículas alfa, associado a um ou dois detectores para a radiação gama como cristais de cintilação ou detectores semicondutores. Outros detectores podem ser

utilizados no lugar do contador proporcional tais como: cintiladores líquidos, onde a geometria 4π é obtida por meio de uma solução cintiladora contendo o material radioativo ou cintiladores plásticos em geometria 4π (BACCARELLI et al., 2003; DIAS et al., 2007, 2008; BACCARELLI et al., 2008). Estes sistemas utilizam módulos eletrônicos convencionais para efetuar o registro das taxas de contagens dos ramos: β , γ e coincidências.

3.2.1 Equações do Método de Coincidência

No método de coincidência o sistema mais utilizado é o sistema $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma\text{NaI(Tl)}$, que emprega um detector proporcional em geometria 4π operado a pressão atmosférica com gás fluente para detecção da radiação beta, acoplado a dois cristais cintiladores de NaI(Tl) para detecção da radiação gama coincidente.

Considerando-se um caso genérico com esquema de desintegração simples, onde a desintegração se dá por um decaimento beta seguido por uma única transição gama coincidente, podem-se escrever as equações para este método como:

$$N_{\beta} = N_o \varepsilon_{\beta} \quad (25)$$

$$N_{\gamma} = N_o \varepsilon_{\gamma} \quad (26)$$

$$N_c = N_o \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (27)$$

Sendo N_{β} , N_{γ} e N_c as taxas de contagens das vias beta, gama e coincidência, corrigidas para radiação de fundo, tempo morto e decaimento. N_o é a taxa de desintegração da fonte ou a atividade procurada, e ε_{β} e ε_{γ} são as eficiências dos detectores β e γ , respectivamente.

Multiplicando-se as equações (25) e (26) e dividindo pela (27), tem-se:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_o \quad (28)$$

A expressão N_c/N_{γ} é o parâmetro de eficiência do detector beta, ε_{β} , e N_c/N_{β} é a eficiência do detector gama, ε_{γ} , de modo que a atividade do radionuclídeo pode ser determinada apenas pelas taxas de contagem obtidas por unidade de tempo. Desta maneira, o método de coincidências é considerado um método primário ou absoluto de medida de atividade pois depende apenas das taxas de contagens das vias beta, gama e de coincidência, não necessitando utilizar os parâmetros de eficiência de detecção e do

esquema de decaimento daquele radionuclídeo. Porém, estas considerações correspondem a condições ideais e raramente são alcançada (MOURA, 1969).

Num caso real, os radionuclídeos apresentam esquemas de decaimento mais complexos, incluindo a presença de transições metaestáveis ou de diferentes ramos de decaimento (β^- , β^+ , captura eletrônica (EC)), ou seja, com vários ramos beta seguidos de emissão gama coincidente, bem como a emissão de elétrons de conversão interna. Também o detector β pode apresentar sensibilidade a outros tipos de radiação não desejadas e não apenas para os eventos beta.

A equação 28 considera um caso ideal, em que a contagem N_β (taxa de emissões beta) é associada apenas a eventos que podem dar origem às coincidências com um detector sensível para um único tipo de radiação. Porém, em muitos casos, o detector $4\pi\beta$ também registra eventos de decaimento não correlacionados como elétrons de conversão interna (IC) e mesmo fótons γ . Assim, as expressões 25 a 27 são modificadas a fim de expressar um caso real.

Um nuclídeo complexo, apresentando mais de um ramo de decaimento β (índices r) e com detecção de radiação γ e de elétrons de conversão interna na via $4\pi\beta$, as equações N_β , N_γ e N_c podem ser expressas como:

$$N_\beta = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left(\frac{a\varepsilon_{ic} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1+a} \right)_r \right] \quad (29)$$

$$N_\gamma = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1+a_r} \quad (30)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\frac{\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon_{\gamma r}}{1+a_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{c_r} \right] \quad (31)$$

Onde:

- N_β taxa de contagem observada na via β (β , elétrons *Auger* e elétrons de conversão);
- N_γ taxa de contagem para a via γ ;
- N_c taxa de contagem para a via de coincidências;
- a_r Abundância relativa do r-ésimo ramo beta;
- ε_{β_r} Eficiência para o r-ésimo ramo beta;

- ε_{ic} Eficiência de contagem de elétrons de conversão interna na via $4\pi\beta$;
- $\varepsilon_{\beta\gamma}$ Eficiência do detector beta para a radiação gama;
- α_r Coeficiente de conversão interna total da r-ésima transição gama;
- ε_{γ_r} Eficiência para a r-ésima transição gama;
- ε_{c_r} Probabilidade de registrar contagens de coincidência gama-gama. Essa probabilidade é evitada quando é selecionado o pico de absorção total gama.

Combinando as equações (29), (30) e (31) a equação (28) passa ser:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\left[\varepsilon_{\beta_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ic} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \left[\frac{\varepsilon_{\gamma_r}}{1 + a_r} \right]}{\left[\frac{\varepsilon_{\beta_r} \varepsilon_{\gamma_r}}{1 + a_r} + (1 - \varepsilon_{\beta_r}) \varepsilon_{c_r} \right]} \quad (32)$$

As taxas de contagens observadas na expressão geral 32 ficam afetadas, quando a intensidade de elétrons de conversão interna se torna significativa. Por outro lado, observa-se que a expressão acima introduz uma dependência das eficiências de contagens. Esta dependência fica mais evidente na versão simplificada da expressão 32, que é obtida quando apenas uma transição gama é selecionada, ou seja, quando a medida da via gama é feita considerando-se apenas as contagens no fotopico de absorção total. Neste caso a eficiência para contagens de coincidência gama-gama, ε_{c_r} , é nula e a equação 32 pode ser re-escrita como:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[1 + \left(\frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ic} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (33)$$

- ε_{β} eficiência de contagem de partículas β na via $4\pi\beta$;
- $\frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}}$ fator de ineficiência β normalizada (de não contar β);
- α coeficiente de conversão interna da transição;

$$\left(\frac{\alpha \varepsilon_{ic} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \quad \text{constante C: contribuição dos elétrons de conversão interna e de} \\ \text{fótons } \gamma \text{ para } N_{\beta}.$$

Portanto, pela equação 33 a taxa de desintegração N_0 passa a depender do conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de decaimento e das eficiências de detecção, não podendo mais ser determinada em função apenas das contagens observadas, uma vez que os elétrons provenientes do processo de conversão interna e os raios gamas podem ser detectados no detector beta, o que contraria o princípio do método de coincidências.

3.2.2 Método da Extrapolação da Eficiência

Para solucionar este problema que inviabiliza a aplicação do método de coincidências, uma vez que o uso de parâmetros do esquema de desintegração e a necessidade do conhecimento prévio das eficiências tornariam este método não mais primário, CAMPION (1959) e BAERG (1966, 1973) desenvolveram uma técnica denominada "Técnica de Extrapolação da Eficiência". Esta técnica foi descrita e discutida por diversos autores (CAMPION, 1959; HOUTERMANS e MIGUEL, 1962; BAERG, 1966; MOURA, 1969; BAERG, 1973), na qual estabeleceram que a determinação de N_0 (ou, atividade) só será possível se pudermos estabelecer uma relação funcional entre N_{β} e o parâmetro de eficiência beta, N_C/N_{γ} , tal que $N_{\beta} \rightarrow N_0$ quando $N_C/N_{\gamma} = \varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$. Tal condição pode ser obtida quando houver uma relação biunívoca entre a eficiência de um determinado ramo beta, ε_{β} , com uma função f_r que relaciona as eficiências dos diversos ramos beta do decaimento do radionuclídeo. Desta maneira, a eficiência dos diferentes ramos beta $\varepsilon_{\beta r}$ passa a ser interpretada como uma função de uma eficiência unitária $\varepsilon_{\beta s}$.

$$\varepsilon_{\beta r} = f_r(\varepsilon_{\beta s}) \quad (34)$$

Em que, $f_r \rightarrow 1$ quando $\varepsilon_{\beta s} \rightarrow 1$.

Na prática o parâmetro $\varepsilon_{\beta s}$ é extrapolado a 1 a partir de uma discriminação gradual em energia das partículas betas emitidas pelo radionuclídeo. Com estas considerações podemos escrever a equação de coincidência generalizada como uma função F do parâmetro de eficiência N_C/N_{γ} tal que:

$$N_{\beta} = N_0 F\left(\frac{N_C}{N_{\gamma}}\right) \quad (35)$$

em que $F \rightarrow 1$ quando $N_C/N_\gamma \rightarrow 1$, ou seja, quando a eficiência de um determinado ramo beta tender à unidade, as eficiências dos demais ramos β também tenderão a 1.

Esta é a fórmula de coincidência generalizada que pode ser reescrita de uma forma mais adequada para sua solução gráfica, utilizando a razão $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C}$ como variável

dependente (eixo Y) e $\frac{\left(1 - \frac{N_C}{N_\gamma}\right)}{\frac{N_C}{N_\gamma}}$, chamado de parâmetro de ineficiência, como variável

independente (eixo X), obtendo assim uma função G do parâmetro de ineficiência que apresenta uma variação mais lenta que a função F. Com isto pode-se escrever a fórmula geral de coincidência como: (HOUTERMANS e MIGUEL, 1962; BAERG, 1966, 1973).

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = N_o G \left[\frac{1 - \left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)} \right] \quad (36)$$

onde a função $G \rightarrow 1$ e $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} \rightarrow N_o$ quando $\left[\frac{1 - \left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)} \right] \rightarrow 0$

As funções (G ou F) são determinadas experimentalmente pela variação do termo N_C/N_γ chamado parâmetro de eficiência.

Obtém-se desse modo a taxa de desintegração N_o (atividade absoluta), a partir da relação $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C}$ versus $\frac{1 - \left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_C}{N_\gamma}\right)}$ de modo a determinar-se a função G.

Para obtenção de N_o devemos determinar experimentalmente a função G que relacione $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C}$ com N_o pela variação do parâmetro de eficiência (ou com o parâmetro de ineficiência: $(1 - N_C/N_\gamma)/(N_C/N_\gamma)$). Esta variação de eficiência pode ser obtida pelo uso de absorvedores externos, ou por auto absorção na fonte, ou por discriminação eletrônica, ou qualquer outro método que possibilite a variação da eficiência beta, desde que as probabilidades de detecção $\varepsilon_{\beta\gamma}$, ε_{ic} e ε_γ sejam constantes ou nulas no intervalo de variação da eficiência beta (MOURA, 1969; KAWADA, 1986). O valor extrapolado da curva para ineficiência zero é obtido por um ajuste polinomial dos dados experimentais.

Portanto, por meio desta técnica, podemos ajustar um polinômio que na maioria das vezes é de baixo grau (1 ou 2), usando-se a razão $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ como a variável dependente (eixo y), para obter a taxa de desintegração N_0 a partir do gráfico $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ versus $\frac{1 - \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}$. Como exemplo da aplicação da técnica de extrapolação neste trabalho, a Figura 23 mostra a curva de extrapolação obtida na padronização do ^{166}Ho . O fator de ineficiência (abscissa) é expresso por: $x = \frac{1 - \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}$ e os valores no eixo y, $\left(\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}\right)/m$, estão representados em relação à massa da amostra radioativa (ou, atividade específica, em kBq/g.). Quando $\left[\frac{1 - \left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}{\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)}\right]$ for a zero, $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ tenderá a N_0 , que é a taxa de desintegração ou atividade absoluta procurada.

Figura 23 – Curva de extrapolação da padronização de ^{166}Ho para a janela de 80,57 keV

Fonte: Autor da tese

3.2.3 Técnica de extrapolação biparamétrica

Na expressão geral 32, as contagens no detector $4\pi\beta$, N_β , consideram mais de um ramo de decaimento por emissão beta (β^- ou β^+ ou captura eletrônica (EC)) seguidos de emissão gama coincidente, bem como a emissão de elétrons de conversão interna (IC).

Muitos radionuclídeos, no entanto, decaem por mais de um modo como no caso do ^{64}Cu que decai por EC , β^+ e β^- (Figura 20). Assim, a contagem no detector $4\pi\beta$, N_β , compreende os eventos de captura eletrônica (EC -*electron capture*), de partículas β^- e β^+ além de elétrons de conversão (IC -*internal conversion*).

A expressão 33 mostra dependência com um único fator de ineficiência β , $\left(\frac{1-\varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}\right)$, sendo que quando existir dois ramos de decaimento diferentes por exemplo, ramo EC e β^+ , a nova equação apresentará dependência com os dois fatores de ineficiência.

A equação que rege o método biparamétrico é obtida dividindo-se a equação (33) pelas duas variáveis ε_{EC} e ε_β , e com um novo rearranjo das variáveis chega-se à equação dada por:

$$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_{EC}\varepsilon_{\beta}} = N_o \left[1 + A \frac{(1-\varepsilon_{EC})}{\varepsilon_{EC}} + B \frac{(1-\varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}} \right] \quad (37)$$

Onde A , B são os parâmetros determinados pelo ajuste biparamétrico. A expressão (37) apresenta a dependência com os dois fatores de ineficiência, $\frac{(1-\varepsilon_{EC})}{\varepsilon_{EC}}$ e $\frac{(1-\varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}}$, e aplicando o método de extrapolação dupla de forma que ambos tendam a zero ($\varepsilon_{EC} \approx 1$ e $\varepsilon_{\beta} \approx 1$), é obtida a atividade procurada, N_o .

3.3 Padronização do ^{64}Cu

A padronização do ^{64}Cu foi feita no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ utilizando os sistemas TAC e SCS (descritos no capítulo 4) para registros dos dados de coincidências, ambos os sistemas permitem a variação da eficiência por absorção externa e por discriminação eletrônica, neste trabalho para a padronização do ^{64}Cu foi utilizado o sistema TAC para as medidas com absorvedores externos e o sistema SCS para variação da eficiência por discriminação eletrônica.

3.3.1 Equações para padronização do ^{64}Cu pelo método de coincidências com absorvedores externos no sistema TAC

Nas medidas no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ as eficiências do detector proporcional foram variadas pelo método dos absorvedores externos e as equações que regem o método de coincidências são apresentadas a seguir.

As equações para as taxas de contagem para as vias de detecção considerando as probabilidades de emissão do ^{64}Cu de acordo com o esquema de decaimento apresentado na figura 20 são:

$$N_{4\pi} = N_o \left[a_1\varepsilon_{\beta^-} + a_2\varepsilon_{\beta^+} + b_1\varepsilon_{EC1} + b_2\varepsilon_{EC2} + a_2(1 - \varepsilon_{\beta^+}) \left(2\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}} - (\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}})^2 \right) + b_2(1 - \varepsilon_{EC2}) \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{IC} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right)_{1345} \right] \quad (38)$$

Onde:

N_o é a taxa de desintegração;

$N_{4\pi}$ é a taxa total medida no detector proporcional que inclui a detecção da radiação beta (β^+ e β^-) e do elétron de captura (EC);

a_1 and a_2 são as probabilidades de emissão para decaimento β^- e β^+ , respectivamente;

b_1 and b_2 são as probabilidades de emissão para decaimento pelo processo de captura eletrônica aos níveis excitado e fundamental, respectivamente;

ε_{β^-} and ε_{β^+} são as eficiências de detecção do contador proporcional para beta menos e pósitrons, respectivamente;

ε_{EC1} and ε_{EC2} , as eficiências de detecção para os eventos de captura eletrônica;

ε_{IC} , a eficiência de detecção do contador proporcional para elétrons de conversão interna da transição 1345,7 keV;

$\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}}$ e $\varepsilon_{\beta_{\gamma 1345}}$, são as eficiências de detecção para raios gama de 511 keV (aniquilação do positron) e 1345.7 keV, respectivamente;

α_T é o coeficiente de conversão total da transição 1345,7 keV.

Na equação 38, em função dos baixos valores de:

$$(1 - \varepsilon_{\beta^+}) \cong 0.01; \varepsilon_{\beta_{\gamma 511}} \cong 0.0013 \text{ (calculado pela simulação de Monte Carlo)}$$

$$a_2 = 0.1752, \text{ (Bé et al, 2012)}$$

$$\alpha_{T1345} = 1.24 \times 10^{-5}, \text{ (Bé et al, 2012)}$$

$$\varepsilon_{\beta_{\gamma 1345}} \cong 0.003 \text{ (calculado pela simulação de Monte Carlo) e}$$

$$b_2 = 0.004744, \text{ (Bé et al, 2012)}$$

e também desprezando os termos de ineficiência da equação 38:

$$a_2 (1 - \varepsilon_{\beta^+}) \left(2\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}} - (\varepsilon_{\beta_{\gamma 511}})^2 \right) \cong 4.6 \times 10^{-5} \text{ e}$$

$$b_2 (1 - \varepsilon_{EC2}) \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{IC} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right)_{1345} \cong 1.2 \times 10^{-5}$$

por seus baixos valores,

A Eq. (38) pode ser re-escrita como:

$$N_{4\pi} = N_0 \left[a_1 \varepsilon_{\beta^-} + a_2 \varepsilon_{\beta^+} + b_1 \varepsilon_{EC1} + b_2 \varepsilon_{EC2} \right] \quad (39)$$

A taxa de contagem dos raios gama de aniquilação de 511 keV é dada por

$$N_{\gamma 511} = N_0 \left(a_2 \left(2\varepsilon_{\gamma 511} - (\varepsilon_{\gamma 511})^2 \right) \right) \quad (40)$$

A taxa de contagem do pico de absorção gama de 1345.7 keV subsequente do processo de captura eletrônica é dado por:

$$N_{\gamma 1345} = N_o (b_2 \varepsilon_{\gamma 1345}) \quad (41)$$

As taxas de contagem de coincidência das duas janelas são, respectivamente, dadas por:

$$N_{C511} = N_o \left[a_2 \varepsilon_{\beta^+} \left(2\varepsilon_{\gamma 511} - (\varepsilon_{\gamma 511})^2 \right) \right] \quad (42)$$

e

$$N_{C1345} = N_o [b_2 \varepsilon_{EC2} \cdot \varepsilon_{\gamma 1345}] \quad (43)$$

As eficiências do contador proporcional são:

$$\left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)_{511} = \varepsilon_{\beta^+} \quad (44)$$

e

$$\left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)_{1345} = \varepsilon_{EC2} \quad (45)$$

As eficiências de captura eletrônica foram consideradas iguais, como sugerido por KAWADA (1986), de forma que $\varepsilon_{EC1} \cong \varepsilon_{EC2} \cong \varepsilon_{EC}$.

As eficiências de detecção para partículas β^+ e β^- também foram considerada iguais, baseado na consideração teórica apresentado por HAVELKA e SOCHOROVÁ (2014), de modo que $\varepsilon_{\beta^-} \cong \varepsilon_{\beta^+} \cong \varepsilon_{\beta}$.

Portanto, equação (39) pode ser aproximada por:

$$N_{4\pi} = N_o[(a_1 + a_2)\varepsilon_\beta + (b_1 + b_2)\varepsilon_{EC}] \quad (46)$$

Definindo $A = (a_1 + a_2)$ e $B = (b_1 + b_2)$ e considerando que $(A + B) = 1$, tem-se:

$$N_{4\pi} = N_o[1 - B(1 - \varepsilon_{EC}) - A(1 - \varepsilon_\beta)] \quad (47)$$

No sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$, pelo fato do ^{64}Cu emitir radiação beta de alta energia, não ocorreu variação significativa na eficiência beta (ε_β), mesmo utilizando vários absorvedores sobre a fonte. Para corrigir a pouca variação de ε_β , ou da ineficiência $(1 - \varepsilon_\beta)$ no parâmetro $N_{4\pi}$ da equação (47), foi aplicado o fator F_k sugerido por KAWADA (1986), dado por:

$$F_k = \left[\frac{1 - B(1 - \varepsilon_{EC})}{1 - B(1 - \varepsilon_{EC}) - (1 - \varepsilon_\beta)(1 - B)} \right] \quad (48)$$

Portanto, multiplicando ambos os lados da equação 47 por F_k e considerando $A = (1 - B)$ teremos:

$$N_{4\pi}F_k = N_o[1 - B(1 - \varepsilon_{EC}) - (1 - B)(1 - \varepsilon_\beta)] \left[\frac{1 - B(1 - \varepsilon_{EC})}{1 - B(1 - \varepsilon_{EC}) - (1 - \varepsilon_\beta)(1 - B)} \right] \quad (49)$$

$$N'_{4\pi} = N_{4\pi}F_k = N_o[1 - B(1 - \varepsilon_{EC})] \quad (50)$$

Com $B = (1 - A)$ e dividindo a equação (50) pela eficiência de captura eletrônica $\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right)_{1345} = \varepsilon_{EC2}$ e somando e subtraindo A , a equação convencional de coincidência pode ser escrita como:

$$\left(\frac{N'_{4\pi}N_\gamma}{N_c}\right)_{1345} = N_o \left[1 + A \left(\frac{1 - \frac{N_c}{N_\gamma}}{\frac{N_c}{N_\gamma}} \right)_{1345} \right] \quad (51)$$

Nesta equação foram aplicadas as correções devido a radiação de fundo, tempo morto e ao decaimento. A taxa de coincidência N_c foi corrigida para tempo morto e para coincidências acidentais utilizando o formalismo de COX e ISHAM (1977), adaptado por SMITH (1978, 1987).

3.3.2 Padronização do ^{64}Cu pelo método de coincidências com discriminação eletrônica no sistema SCS

Na medida com sistema SCS foram variadas as eficiências ε_{EC} e ε_{β^+} pelo método de discriminação eletrônica, o que permitiu a aplicação do método biparamétrico para determinação da atividade.

Como já descrito no item 3.2.3, este método pode ser usado para medida da atividade de radionuclídeos que decaem por mais um tipo de processo, como no caso do ^{64}Cu . Quando apenas dois ramos são considerados, por exemplo, captura de elétrons e β^+ , a atividade é obtida usando uma curva de extrapolação dupla selecionando duas janelas de raios gama: uma para o ramo de captura de elétrons e outra para o ramo β^+ .

A equação que rege este método considerando-se desprezíveis os termos de ineficiências como descrito no item 3.3.1, é a equação (37):

$$\frac{N_{4\pi}}{\varepsilon_{EC}\varepsilon_{\beta}} = N_o \left[1 + A \frac{(1-\varepsilon_{EC})}{\varepsilon_{EC}} + B \frac{(1-\varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}} \right]$$

Onde:

A , B são os parâmetros determinados pelo ajuste biparamétrico, sendo que a extrapolação de $\frac{(1-\varepsilon_{EC})}{\varepsilon_{EC}}$ e de $\frac{(1-\varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}}$ para zero fornece a atividade absoluta N_o .

3.4 Padronização do ^{166}Ho

O ^{166}Ho foi padronizado no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ utilizando o sistema SCS para os registros dos dados experimentais. Esta padronização foi inicialmente feita selecionando-se as coincidências beta-gama variando-se a eficiência beta pelo uso de absorvedores externos e por discriminação eletrônica, relacionadas ao fóton mais intenso que é o raios gama de 80,57 keV (6,55%).

Posteriormente foi feita uma medida selecionando-se a radiação gama de 1379,45 keV (0,93%) variando-se a eficiência beta por meio de absorvedores externos.

Conforme já descrito no item 3.1.2, o radionuclídeo ^{166}Ho se desintegra unicamente por emissão de β^- para os estados excitados do ^{166}Er , com emissão subsequente de vários fótons gama e de raios X, com uma energia máxima de radiação β^- de 1.854,5 keV, energia de radiação gama de 80,57 keV (6,55%), de 1379,45 keV (0,93%) e meia-

vida de 26,8 horas. Por isso a equação que rege o método de coincidências é dada pela Equação 33:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left[1 + \left(\frac{1-\varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right) \left(\frac{\alpha\varepsilon_{ic}+\varepsilon_{\beta\gamma}}{1+\alpha} \right) \right]$$

onde $\left(\frac{\alpha\varepsilon_{ic}+\varepsilon_{\beta\gamma}}{1+\alpha} \right)$ é uma constante C, que é a contribuição dos elétrons de conversão interna e de fótons γ para N_{β} . Chamando $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_C}$ de y e $\left(\frac{1-\varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right)$ de x, obtemos um polinômio.

Quando $\left(\frac{1-\varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right)$ for a zero, $\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_C}$ tenderá a N_0 , que é a taxa de desintegração ou atividade absoluta do ^{166}Ho procurada.

3.5 Espectrometria gama

A determinação das probabilidades de emissão gama é feita utilizando-se espectrômetro gama com detector HPGE. Este espectrômetro deve ter sua curva de calibração em eficiência determinada por meio da medida de várias fontes previamente padronizadas (DEBERTIN e HELMER, 1988).

A curva de eficiência de um espectrômetro gama para uma determinada geometria de contagem é obtida a partir de medidas de fontes radioativas padrões com energias e intensidades gama muito bem conhecidas e meias-vidas suficientemente longas para não influir na taxa de contagem obtida. A eficiência é determinada usando a expressão:

$$\varepsilon(E_{\gamma i}) = \frac{S(E_{\gamma i})}{A.p(E_{\gamma i})TF} \quad (52)$$

onde

$\varepsilon(E_{\gamma i})$	eficiência para o i-ésimo gama de energia E
$S(E_{\gamma i})$	área sob o pico de absorção total do i-ésimo gama de energia E
A	atividade da fonte na data da medida
T	tempo de medida
$p(E_{\gamma i})$	probabilidade de emissão do i-ésimo γ de energia E
F	Fator de correção igual ao produto dos demais fatores de correção: f _s =correção para efeito soma em cascata

f_{τ} = correção para tempo morto

f_a = correção para atenuação no envoltório da fonte

f_g = fator geométrico

A relação entre eficiência e energia é logarítmica, sendo a curva determinada por um ajuste polinomial. A equação obtida será da forma

$$\ln \varepsilon(E_{\gamma i}) = \sum_{j=0}^n c_j (\ln E_{\gamma i})^j \quad (53)$$

onde

c_j coeficientes do ajuste

n grau do polinômio ajustado

A probabilidade de emissão gama por decaimento é determinada pela equação:

$$p(E_{\gamma i}) = \frac{S(E_{\gamma i})}{A \cdot \varepsilon(E_{\gamma i})_{TF}} \quad (54)$$

Onde $\varepsilon(E_{\gamma i})$ é obtido da curva de calibração e A é a atividade absoluta determinada pelo método de coincidências.

A determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento é, portanto, feita por meio da razão entre área do pico para uma dada energia gama pela atividade da fonte determinada pelo sistema primário.

Se a atividade da fonte for padronizada por um método primário, a intensidade absoluta de emissão de fótons será determinada. Porém, em outras ocasiões, as fontes não são padronizadas por métodos absolutos e neste caso somente a intensidade de emissão gama relativa é calculada (LUCA et al, 2012).

3.5.1 Calibração do espectrômetro HPGe

A probabilidade de emissão gama por decaimento do fóton gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu e dos fótons gama de 80,57 keV e 1379,45 keV do ^{166}Ho foram determinadas medindo-se ampolas seladas de vidro, semelhantes às ampolas padrão utilizadas para calibração do espectrômetro, contendo 1 ml de solução de ^{64}Cu e de ^{166}Ho , uma para cada irradiação, preparadas juntamente com as respectivas fontes finas de *Collodion*, (utilizadas nas medidas de coincidência no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$), e contadas no detector HPGe previamente calibrado com as cinco fontes padronizadas em sistema

primário: ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{133}B , ^{137}Cs e ^{241}Am , cujas características constam na Tabela 1 no item 4.5.2.

A curva de calibração, eficiência em função da energia, foi determinada por meio de medidas com as fontes padrão acima citadas, cujas atividades absolutas foram determinadas no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$.

3.6 Simulação pela técnica de Monte Carlo

A técnica de Monte Carlo pode ser aplicada em inúmeros processo estatísticos, dentre eles pode ser aplicada para obtenção das curvas de resposta de detectores, o que é obtido por meio dos códigos de transporte da radiação, como o código MCNP6 (ORLN, 2006) utilizado tanto na simulação da curva de extrapolação da eficiência do sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, como para a simulação das curvas de eficiência de pico do espectrômetro HPGe.

3.6.1 Simulação da curva de extrapolação da eficiência do sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$

Conforme já mencionado, foi desenvolvido pelo LMN um código chamado Esquema (TAKEDA 2005, 2006; DIAS, 2006), que utiliza a técnica de Monte Carlo para padronização de radionuclídeos simulando o método de coincidência aplicado ao sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$. Este código segue o caminho, no esquema de desintegração, desde o estado inicial do radionuclídeo precursor até o estado fundamental do núcleo filho. Cada etapa do esquema de desintegração é selecionada por meio de números aleatórios levando em conta as probabilidades de cada ramo beta ou de captura eletrônica, as probabilidades de transição e os coeficientes de conversão interna. Quando o estado final for atingido é verificado se houve detecção de eventos beta, captura eletrônica ou transições gama e são contabilizados os eventos para os três espectros: beta, gama e coincidência. Este programa tem sido aplicado a diversos radionuclídeos utilizando-se os métodos de variação da eficiência beta por meio de absorvedores colocados na fonte radioativa ou por variação nos níveis de discriminação eletrônica da via beta.

Neste trabalho, além do programa Esquema usado para simulação da curva de extrapolação do sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ para o ^{166}Ho na janela de 1379,45 keV, foi utilizado o programa Esquema, versão 155, que é uma versão modificada para simulação da detecção de um radionuclídeo que desintegra por três ramos distintos: beta menos, beta mais e captura eletrônica, como é o caso do ^{64}Cu . Nesta versão foi incluída uma tabela específica

na parte dedicada ao detector gama para registro de fótons de 511 keV gerados por pósitrons no sistema $4\pi\beta(\text{PC})$.

A figura 24 mostra a geometria considerada na simulação obtida pelo código VISED incluído no código MCNP6 (ORNL, 2006). Todos os componentes do sistema considerados são mostrados com diferentes cores na figura. Detalhes do depósito da fonte radioativa assim como o substrato de Collodion foram também incluídos no modelo. Na figura (23) são mostrados: o cristal de NaI(Tl) em azul com a fotomultiplicadora em branco. A cor magenta representa o detector proporcional com a fonte radioativa no meio, a parte verde representa o gás usado. A blindagem de chumbo que envolve o sistema de detecção é mostrada em laranja, a parte roxa é o ar.

Figura 24 - Geometria considerada no programa Esquema: O cristal de NaI(Tl) é mostrado em azul escuro com a fotomultiplicadora em branco. A cor magenta representa o detector proporcional com a fonte radioativa no meio, a parte verde representa o gás usado. A blindagem de chumbo que envolve o sistema de detecção é mostrado em laranja, a parte roxa é o ar.

Fonte (KOSKINAS et al., 2010)

3.6.2 Determinação da eficiência do espectrômetro HPGe pela técnica de Monte Carlo

Para determinação das curvas de eficiência de pico e total do espectrômetro HPGe nas geometrias utilizadas, para o cálculo do efeito soma em cascata, descrito mais adiante no item 4.5.1, e para utilização nas regiões de alta energia em que havia falta de padrões, como no caso do ^{166}Ho , foi aplicada a técnica de Monte Carlo por meio do código MCNP6 (ORNL, 2006). Para utilização deste código é preciso informar a geometria do sistema como: dimensões do detector, janela de berílio, camada morta, dimensões do orifício interno, dados estes especificados pelo fabricante (GERMANIUM DETECTORS, 1993), assim como características das fontes. Neste trabalho foram utilizadas ampolas, com seu respectivo suporte e espessura do absorvedor (quando utilizado). Na figura 25 é apresentada a geometria considerada obtida por meio do código VISED, incluído no MCNP6, sendo que todos os componentes considerados estão indicados por cores distintas na figura. O cristal detector HPGe é apresentado em magenta e o furo interno em verde claro. A cor roxa representa a ampola com solução radioativa no centro. A parte em marron representa o suporte de lucite. O suporte de alumínio que envolve o cristal aparece em amarelo e a janela de berílio em azul escuro.

Figura 25 - Geometria considerada na determinação da eficiência. O cristal detector HPGe é apresentado em magenta e o furo interno em verde claro. A cor roxa representa a ampola com solução radioativa no centro. A parte em marron representa o suporte de lucite. O suporte de alumínio que envolve o cristal aparece em amarelo e a janela de berílio em azul escuro.

Fonte: Fonte (KOSKINAS et al., 2017)

4 PARTE EXPERIMENTAL

A seguir serão apresentados os programas utilizados para análise dos dados experimentais assim como os arranjos dos detectores, diagramas dos módulos eletrônicos empregados, os procedimentos de preparação das fontes radioativas utilizadas, as correções aplicadas para determinação das atividades e das probabilidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos estudados

4.1 Programas utilizados para as análises dos dados experimentais

Para os cálculos das atividades absolutas das fontes medidas no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, assim como, para análise dos espectros gama obtidos no espectrômetro de HPGe, foram utilizados vários programas desenvolvidos no LMN, elaborados na linguagem FORTRAN descritos a seguir:

CONTAC 15

O programa CONTAC 15 (DIAS, 2001) é um programa utilizado para análise dos dados registrados no sistema TAC. Este programa analisa o espectro coletado no multicanal, em que são representadas as contagens beta, gama e de coincidências, e calcula todas as correções a serem aplicadas para obtenção da atividade, tais como: correção de tempo morto, coincidências acidentais, correção de decaimento, e de radiação de fundo.

SCTAC 6

O programa SCTAC 6 (DIAS, 2010) é um programa utilizado para análise dos dados registrados no sistema SCS. Este programa analisa os dados digitalizados considerando a altura de pulso e o tempo de ocorrência, reconstituindo os espectros dos detectores beta, gama e definindo as coincidências. Toda a análise para determinação da atividade é feita posteriormente à coleção dos dados. Este programa permite estabelecer diferentes tempos mortos e de resolução, assim como, estabelecer os níveis de discriminação das vias de detecção beta e gama. O programa SCTAC 6 calcula também todas as correções necessárias para determinação da atividade (correção de tempo morto, coincidências acidentais, correção de decaimento, e de radiação de fundo).

ALPINO 1

O programa ALPINO 1 (DIAS, 2001) é um programa utilizado nas medidas com espectrômetro gama HPGe. Neste programa os espectros registrados no multicanal são analisados integrando-se as áreas de cada fotopico de interesse. É utilizado tanto para determinação da curva de calibração do espectrômetro como para determinação da atividade da amostra em estudo, aplicando as correções para subtração da radiação de fundo, geometria, tempo morto e atenuação. A correção para efeito soma em cascata é aplicada após a determinação das áreas.

NUCS8

O programa NUCS8 (DIAS, 2017) é um programa desenvolvido no LMN para o cálculo do efeito soma em cascata, utilizando as eficiências de pico e total calculadas pela técnica de Monte Carlo por meio do código MCNP 6 (ORNL, 2006) utilizando o esquema de decaimento do radionuclídeos em análise.

LINFIT

O programa LINFIT (DIAS, 1999) é um programa que aplica o método de mínimos quadrados, utilizado para determinação da atividade absoluta medida no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, por meio dos parâmetros da curva de extrapolação por ajuste polinomial Y versus X. As incertezas são tratadas pela metodologia de análise de covariância já incorporadas no programa de ajuste (SMITH, 1991), calculando também o parâmetro χ^2 reduzido utilizado para escolha do melhor ajuste.

LOGFIT

O programa LOGFIT (DIAS e MOREIRA, 2005). é um programa que aplica o método de mínimos quadrados para estabelecer os parâmetros de ajuste polinomial logarítmico de $\ln(y)$ vs. $\ln(x)$, utilizado para determinação da curva de calibração do espectrômetro HPGe, também com aplicação da metodologia de análise de covariâncias, calculando o parâmetro χ^2 reduzido.

4.2 Sistemas de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ e os arranjos eletrônicos

Dentre os sistemas de calibração mais conhecidos em metrologia de radionuclídeos que permite medir uma grandeza radiológica de modo absoluto destaca-se o sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ que permite uma eficiência de contagem elevada, próxima de 100% para partículas carregadas leves e radiação alfa.

. O LMN possui dois sistemas de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, com um detector proporcional em geometria 4π cada um. O contador proporcional é a gás fluente (90% de argônio e 10% de metano) operando a uma pressão de 0,1 MPa, em geometria 4π para detectar as radiações β emitidas.. Para detecção da radiação gama é utilizado o cristal cintilador de NaI(Tl) ou um detector semicondutor de HPGe.

No Sistema I a detecção dos fótons é realizada com um cintilador de NaI(Tl) e um detector semicondutor de HPGe, enquanto que no Sistema II são utilizados dois cintiladores NaI(Tl). Cada um dos sistemas está confinado no interior de uma blindagem de chumbo para minimizar os efeitos da radiação de fundo (Figura 26 e 27).

No ^{64}Cu , a coincidência captura eletrônica – raios gama de 1345,7 keV apresenta baixa intensidade (0,47%). Por isso, foi utilizado o arranjo de detecção Sistema II para medidas do ^{64}Cu , uma vez que apresenta maior eficiência de detecção gama, pois conta com dois detectores de cintilação NaI(Tl) com 76 mm x 76 mm, dispostos a 180° (Figura 27).

Para a medida do ^{166}Ho em função da baixa energia do gama mais intenso (80,57 keV) foi selecionado o Sistema I, Figura 26, onde o contador proporcional tem uma janela de alumínio mais fina de 0,1 mm de espessura, de modo a diminuir a atenuação da radiação gama de 80,57 keV, o qual permite a determinação da atividade pela análise das coincidências beta-gama selecionando as energias gama de 80,57 keV (6,55%). Neste caso foi empregado um cintilador de NaI (Tl) de 54 x 54 mm de diâmetro de modo a diminuir a influência da radiação de fundo na região de baixa energia.

Para detecção da radiação gama de 1379,5 keV (0,93%) em coincidência com a emissão beta foi utilizado um cristal de NaI(Tl) de 76 x 76 mm de diâmetro que apresenta maior eficiência, uma vez que esta radiação gama tem uma menor intensidade (~1%).

O sistema $4\pi\beta-\gamma$ é composto por duas partes simétricas de latão (Figura 28) e o suporte para as fontes que fica entre as partes é uma placa deslizante com um orifício (Figura 29), no qual é acomodada a fonte. Assim, a amostra é introduzida no detector sem a necessidade de abri-lo (MOURA, 1969)

Figura 26- Detectores de radiação do sistema I do LMN

Fonte: autor da tese.

Figura 27 - Detectores de radiação do sistema II do LMN

Fonte: autor da tese.

Figura 28- Vista externa do detector proporcional do sistema $4\pi\beta$ - γ composto por duas partes simétricas de latão. O suporte para as fontes fica entre as duas metades.

Fonte: autor da tese.

Figura 29 - Suporte deslizante para posicionamento da fonte no interior do detector proporcional.

Fonte: autor da tese.

4.2.1 Correções aplicadas no sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$

Na determinação da atividade absoluta nos sistemas de coincidências são aplicadas diversas correções nas taxas de contagens obtidas como na radiação de fundo (BG), correções para o tempo morto do sistema de detecção $4\pi\beta(\text{PC})\text{--NaI(Tl)}$, para o decaimento da fonte no decorrer das medidas e para as coincidências acidentais que podem ocorrer dentro do tempo de resolução. Todas estas correções foram feitas por meio do programa CONTAC-15 (DIAS, 2001) para o sistema TAC e para o sistema SCS, com o programa SCTAC 6 (DIAS, 2010)

Correção da radiação de fundo

A radiação de fundo é a existente no ambiente, não sendo proveniente da fonte a ser medida devendo, portanto, ser subtraída do espectro obtido. Para efetuar esta correção foram medidos espectros da radiação de fundo nas mesmas condições em que foram realizadas as medidas das fontes de ^{64}Cu e ^{166}Ho .

Correção do tempo morto

Nos sistemas de medidas com detectores existe um intervalo mínimo de tempo que separa dois eventos para que sejam registrados como pulsos distintos. Este intervalo é denominado tempo morto que representa o tempo em que o sistema se encontra ocupado registrando os eventos e, portanto, está indisponível para novas aquisições. Devido ao tempo morto, grandes perdas de contagem poderão ocorrer quando a amostra possuir uma alta taxa de contagem. No sistema utilizado, este tempo é dado pelo tempo morto do multicanal pois é o maior em relação ao tempo morto dos demais componentes do sistema de detecção (tempo morto intrínseco do detector e do sistema eletrônico associado). A correção para este efeito é obtida por meio da razão dos tempos, ou seja, a razão entre o tempo vivo (*time live*) com tempo real de medida (*time real*).

Correção durante o decaimento da fonte

Nas medidas de radionuclídeos que possuem constante de decaimento (λ) elevada, o decaimento da fonte durante a medida pode alterar os resultados sendo necessário aplicar uma correção, além da correção de decaimento para a data de referência. A taxa de contagem é corrigida por meio da equação 55:

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (55)$$

Onde:

N_r é a taxa de desintegração na data da referência;

N é a taxa de desintegração na data da medida;

t é o tempo de medida;

t_m é a data da medida;

t_r é a data de referência;

λ é a constante de decaimento do radionuclídeo

Correção das coincidências acidentais

A taxa de coincidências é obtida pela detecção de duas radiações distintas consideradas simultâneas em relação ao tempo de resolução do sistema de detecção. No entanto, como o tempo de resolução assume um valor finito, também poderão ser considerados coincidentes os eventos provenientes de núcleos distintos. Estes eventos são denominados coincidências espúrias ou coincidências acidentais. Estas “coincidências” podem interferir na determinação da taxa de contagens, acarretando um erro no valor absoluto da atividade. Estes eventos são corrigidos em função do tempo de resolução e do tempo morto quando este for considerado igual para as vias beta e gama. Este cálculo está incorporado nos de cálculo da atividade.

4.3 Sistema eletrônico utilizando módulo TAC (Time to Amplitude Converter)

O sistema TAC desenvolvido no LMN, utiliza um módulo conversor de tempo em amplitude denominado *Time Amplitude Converter*. Na Figura 30 é apresentado o diagrama de blocos que corresponde a este sistema.

No sistema TAC, a parte inicial em vermelho contém os detectores de cintilação NaI(Tl) e detector proporcional em geometria 4π , a parte em verde contém os módulos de atraso para permitir o registro das vias beta, gama e coincidências, com diferentes atrasos nos tempos para serem enviadas para o módulo TAC e a parte em azul com o módulo *Multi Channel Analyzer* (MCA), registra as amplitudes enviadas pelo TAC., construindo um espectro correspondente às contagens beta, gama e coincidência.

O módulo TAC possui duas entradas lógicas, *Start* e *Stop* e uma saída analógica, sendo que a amplitude de pulso é diretamente proporcional ao tempo entre os sinais de *Start* e *Stop*, estes sinais podem ser enviados de duas vias diferentes (beta e gama) dando origem a uma coincidência, ou podem ser enviados por uma única via ou seja pela via beta (contagem beta) ou pela via gama (contagem gama).

O gerador de retardo ou atraso (*delay generator*) é uma unidade que permite que o seu sinal de saída, além do tempo normal de processamento, tenha um atraso adicional estabelecido de acordo com a necessidade do circuito, para compatibilizar os tempos de chegada numa unidade de coincidência ou num sistema de contagem com gatilho (*gate*).

No sistema TAC ele é utilizado para atribuir um atraso diferente em cada via, de modo a produzir pulsos no início do espectro (menores amplitudes) que correspondem ao pico de contagem beta, ou pulsos com maior amplitude, que corresponde ao pico de

contagem gama, no caso da medida do ^{64}Cu , foram seleccionadas duas janelas gama com diferentes atrasos.

Figura 30 - Diagrama de blocos do arranjo eletrônico do sistema TAC.

Fonte: TOLEDO, 2009.

Na Figura 31 é apresentado um espectro das contagens provenientes do TAC em função do intervalo de tempo estabelecido. Este espectro com 1200 canais foi obtido no MCA com o sistema de medida TAC para ^{64}Cu , com dois gamas seleccionados. No sistema TAC o tempo morto considerado é o do multicanal. A correção é dada pela razão entre o tempo vivo (*live time*) e o tempo real (*real time*) de medida registrados no multicanal e o tempo de resolução ($\sim 2,0\mu\text{s}$) é obtido pelo pico de coincidências.

Figura 31- Espectro típico do TAC obtido para o Cu-64

Fonte: autor da tese.

Como pode ser visto na figura 31, a contagem de coincidências é dada pela área do pico central N_{c1} (pico de coincidência entre β^+ e gama de 511 keV) e N_{c2} (pico de coincidência entre EC e o gama de 1345,7 keV). As contagens de eventos isolados (não coincidentes) são obtidas pelas áreas do primeiro, terceiro e quinto picos, β , γ_1 e γ_2 respectivamente. Para obter as contagens totais de eventos deve-se somar a contagem de coincidências.

4.4 Sistema de coincidências por software (SCS)

Usualmente, as medidas por coincidência $4\pi\beta-\gamma$ são realizadas pela variação da eficiência beta, colocando-se absorvedores sobre as fontes radioativas ou por meio de discriminação eletrônica. Estes procedimentos são bastante demorados se forem executados para cada condição de medida. Por esta razão, o LMN desenvolveu um novo sistema eletrônico baseado na metodologia de *Coincidência por Software* (*Software Coincidence System, SCS*). Este sistema possibilita a obtenção de um conjunto completo de pontos experimentais por meio de uma única medida e realizar as análises dos dados *a posteriori*, gerando ao final uma curva de extrapolação com a qual se obtém a atividade de uma amostra. Portanto, o tempo de aquisição é substancialmente reduzido.

No SCS os dados armazenados no computador são lidos por meio de um software SCTAC 6, que possibilita a análise dos dados de altura de pulso, tempo de ocorrência, tempo de resolução, tempo morto e com o estabelecimento de níveis de discriminação das vias de detecção beta e gama verifica as coincidências ocorridas fornecendo posteriormente a atividade. Este programa reconstrói os espectros dos detectores beta e gama.

Os níveis de discriminação das vias beta e gama são estabelecidos posteriormente durante o processo de análise. Deste modo, apenas uma única medida é necessária para seleção das energias gama de interesse e para a variação da eficiência beta pelo método de discriminação por software, reduzindo consideravelmente o tempo de medida. Os tempos mortos e de resolução são também estabelecidos no programa SCTAC 6.

Na Figura 33 é apresentado o espectro de contagens beta, gama e coincidências do ^{64}Cu obtido por meio do código SCTAC 6. Este espectro é semelhante ao do sistema TAC. Os picos N_β e N_γ correspondem às contagens totais das vias beta e gama respectivamente e o pico N_c corresponde às coincidências determinadas pelo programa SCTAC 6.

Figura 33 - Espectro de contagens beta, gama e coincidências obtido por meio do código SCTAC 6.

Fonte: autor da tese.

4.5 Detector de HPGe ou Germânio Intrínseco

Para se determinar a probabilidade de emissão gama por decaimento, após obtenção da atividade absoluta com o detector $4\pi\beta-\gamma$, utilizamos um sistema de medida com um detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe), modelo REGE (Reverse-electrode Ge detector), numa simetria coaxial, sua resolução em energia é de 1,79 keV para a energia de 1332 keV do ^{60}Co . Este detector possui uma janela de berílio de 0,2 μm de espessura sendo seu diâmetro externo de 57,7 mm e volume ativo de 41,5 mm^3 , com eficiência de 15% em relação ao NaI(Tl) (GERMANIUM DETECTORS, 1993).

Neste trabalho, a distância fonte-detector utilizada foi de 17,8 cm. A Figura 34 mostra o arranjo experimental, posicionado em uma blindagem de chumbo de 100 cm x 100 cm x 100 cm revestida internamente com materiais de números atômicos decrescente (Cd, Cu, e plástico) para minimizar a detecção dos raios X provenientes da interação da radiação gama com a blindagem.

Para as medidas com a amostra de ^{64}Cu , não foi usado nenhum absorvedor com exceção do involucro de lucite para posicionamento das ampolas.

Para as medidas do ^{166}Ho inicialmente foram feitas medidas do mesmo modo que as medidas do ^{64}Cu , no entanto, posteriormente foi introduzido um absorvedor de alumínio de 7 mm com o objetivo de atenuar as radiações beta de alta energia, 1773,9 keV e 1854,5 keV, principalmente na região de baixa energia (80,57 keV).

Figura 34 - (A)- Espectrômetro HPGe. (B) - Suporte para fontes do espectrômetro HPGe numa distância fonte-detector de 17,8 cm

(A)

(B)

Fonte: autor da tese.

4.5.1 Correções aplicadas nos espectros obtidos com detector HPGe

As correções aplicadas nas áreas dos fotopicos nas medidas com o detector HPGe foram: correção para a radiação de fundo (BG), para o tempo morto do sistema de detecção, para o efeito de auto-absorção ou atenuação, para geometria e para o efeito soma em cascata.

Correção da radiação de fundo

Para efetuar a correção de radiação de fundo foram realizadas medidas sem a fonte radioativa e nas mesmas condições em que foram realizadas as medições. Também foi realizada subtração das contribuições do ‘contínuo’ provenientes de efeitos não desejados como o espalhamento Compton. Essa correção foi feita por meio do programa ALPINO (DIAS, 2001).

Correção do tempo morto

Para a correção do tempo morto foi aplicado o método do pulsador. Neste método um pulsador é ligado diretamente no pré-amplificador do sistema eletrônico que envia pulsos numa frequência conhecida de 60Hz. Seu ganho assume um valor de maneira que ocupe uma posição no final do espectro para que desta forma não se sobreponha a nenhum fotopico de interesse. O fator de correção é dado por:

$$f_{\tau} = \frac{S_{pm}}{S_{pr}} \quad (56)$$

Onde:

S_{pm} é a área sob o pico do pulsador no espectro da fonte medida.

S_{pr} é a taxa real de contagens do pulsador, 60 cont/s.

Correção para efeito geométrico

Com relação à correção do efeito geométrico, este foi considerado igual à 1, uma vez que as amostras foram medidas na mesma geometria das fontes padrão utilizadas na determinação das curvas de calibração.

Correção para atenuação

O fator de correção para atenuação foi considerado igual a 1 uma vez foram utilizadas ampolas contendo soluções aquosas com mesmo volume seja para as amostras padrões como as de ^{64}Cu e de ^{166}Ho . Apenas a espessura do vidro e a altura do líquido foram consideradas dentro das incertezas calculadas pelo programa de análise dos picos.

Correção para efeito soma em cascata

Nos radionuclídeos emissores de múltiplos raios gama, como no caso do ^{166}Ho e nos radionuclídeos padrões ^{60}Co , ^{133}Ba e ^{152}Eu , os seus esquemas de decaimento apresentam várias radiações gama em cascata, por este motivo pode ocorrer o surgimento do efeito soma em cascata que deve ser corrigido. Este efeito ocorre quando a vida média da transição comparada com o tempo de resolução do sistema de detecção ou do sistema eletrônico associado for muito pequena (ns).

Os fótons emitidos em cascata na prática são considerados “eventos coincidentes” que ao interagir no detector poderão ser interpretados como um único fóton. Se o número desses “eventos coincidentes” for suficientemente grande para a formação de um pico no espectro, surgirá um pico-soma cuja energia corresponde à soma das transições de dois gamas individuais. Também pode haver contribuição do efeito soma no fundo contínuo devido a interações com perda parcial de energia.

Este efeito pode ser diminuído com a redução da eficiência de detecção. Portanto, aumentando-se a distância fonte-detector e/ou utilizando-se detectores com um menor volume sensível, pode-se diminuir a eficiência de detecção e em consequência, as ocorrências deste efeito. O efeito soma sendo considerado uma ‘coincidência’ entre dois gamas em cascata proveniente de um mesmo núcleo, a probabilidade de ocorrência deste efeito é independente da atividade da fonte em questão, podendo ocorrer mesmo para baixas taxas de contagens.

4.5.2 Análise dos espectros

Conforme mencionado, as amostras de ^{64}Cu e ^{166}Ho padronizadas no sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(Tl)}$ foram medidas no detector HPGe de modo semelhante aos padrões.

A curva de calibração em eficiência para a geometria de medida, em escala log-log, foi ajustada por um polinômio por meio do programa LOGFIT (DIAS e MOREIRA, 2005). O grau do polinômio foi determinado pelo menor valor de Qui-Quadrado reduzido obtido.

Para obtenção da curva de eficiência, o tempo de medida de cada ampola padrão variou de 60000 segundos a 250000 segundos para uma boa estatística de contagem. Na Tabela 1 são apresentadas informações sobre as fontes padrão utilizadas como meia-vida, energia, intensidade de transição gama, atividade e data de referência.

Tabela 1 - Dados das fontes padrão em ampola utilizadas para a obtenção da curva de calibração

Radionuclídeo	Meia-vida (dias)	Energia ^[26] (keV)	Intensidade ^[26] (%)	Atividade (kBq)	Data de Referência
¹⁵² Eu	4933 (11)	121,7824(4)	28,37(13)	6,746(22)	01/07/99 às 09:00h
		244,70 (x)	7,53 (4)		
		344,2811(19)	26,57(11)		
		411,126(3)	2,238(10)		
		443,965(4)	3,125(14)		
		778,903(6)	12,97(6)		
		867,390(6)	4,214(25)		
		964,055(4)	14,63(6)		
		1112,087(6)	13,54(6)		
		1408,022(4)	20,85(9)		
²⁴¹ Am	157850 (240)	59,537(1)	35,78(9)	2,921(409)	30/11/2002 às 21:00h
¹³³ Ba	3862 (15)	80,900	35,94(3)	12,225	01/8/2002 às 00:00h
		276,398(1)	7,16(5)		
		302,853(1)	18,30(6)		
		356,017(2)	62,05(19)		
		383,8485(12)	8,94(6)		
⁶⁰ Co	1925,5(5)	1173,2380	99,86 (2)	44,431 (76)	25/6/2002 às 00:00 h
		1332,5020	99,98 (1)		
¹³⁷ Cs	11020 (4)	661,61	85,10 (20),	52,11 (56)	01/ 03/1993 às 00:00 h

Fonte: International Atomic Energy Agency. IAEA-Pub-1287, 2007

4.6 Preparação das amostras de ^{64}Cu e ^{166}Ho

Neste item são descritos os procedimentos empregados para irradiação das amostras no reator IEA-R1, para produção das soluções de ^{64}Cu e ^{166}Ho , para preparação das fontes usadas nas medidas no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ para padronização das soluções e no espectrômetro gama.

4.6.1 ^{64}Cu

Amostras de fio de Cu, com pureza 99,999%, diâmetro de 0,020 polegadas (0,51 mm), fornecido pela Baker Analyzed, foram irradiadas durante 1 período (aproximadamente 8 horas), no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP, num fluxo de nêutrons térmicos de $6,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

O radioisótopo de ^{64}Cu foi produzido na reação $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$, irradiando-se massas de fio de cobre ao redor de 0,5 mg, envolto em papel alumínio inserido num cilindro de alumínio (coelho). Após a irradiação o fio foi dissolvido para preparação de várias fontes em películas finas de *Collodion* (nitrato de celulose) que são aderidas em arandelas de aço inox.

As soluções de ^{64}Cu foram obtidas dissolvendo-se os fios irradiados de Cu em 20 μl de ácido nítrico 65%. Imediatamente formou-se uma gotícula azulada que foi a seguir diluída em 15 ml de solução 0,1N HCl, obtendo-se ao final uma solução incolor. Com esta solução de ^{64}Cu foram preparadas diversas fontes com massas de 9 a 50 mg que foram determinadas pelo método do picnômetro numa balança analítica Mettler XP56. (Figura 35). As atividades específicas obtidas são da ordem de kBq/g, que foram medidas nos sistemas de coincidência.

Figura 35- (A) Picnômetro utilizado para determinação das massas. (B) Balança analítica Mettler XP56.

Fonte: autor da tese.

As fontes foram preparadas sobre substratos de *Collodion* que são utilizados na confecção das fontes radioativas. Estes substratos são filmes muito finos com espessura de aproximadamente $20 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ obtidos na deposição sobre uma superfície de água deionizada de 1 ml de solução preparada com 20 ml de *Collodion* diluído em acetato de isoamila numa proporção de 1:1. Na superfície da água forma-se uma película elástica com espessura de aproximadamente $20 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$. Sobre esta superfície são colocadas cuidadosamente arandelas com 4 cm de diâmetro externo e 2 cm de diâmetro interno feitas em aço inoxidável de 0,1 mm de espessura.

Em um curto intervalo de tempo a película elástica adere ao aço inox, sendo posteriormente cuidadosamente recortada para não romper. Após a sua remoção, as arandelas com a película são colocadas na posição vertical para secar à temperatura ambiente. Uma vez secas, as arandelas são levadas para metalização com uma fina camada de ouro com pureza de 99,99% e cerca de $10 \mu\text{g cm}^{-2}$ de espessura, de modo a torná-las condutoras (Figura 36 e Figura 37). Efetua-se a metalização para equalizar o potencial elétrico em toda superfície da fonte pois o polímero é isolante elétrico. Com a uniformização do potencial elétrico, o campo elétrico no detector torna-se mais homogêneo, de forma que se obtém um ganho de eficiência de contagem de cerca de 10 a 20%.

Figura 36 - Metalizadora do LMN: Os filmes finos utilizados na confecção de fontes radioativas e os absorvedores são metalizados com uma camada fina de ouro com pureza 99,99%.

Fonte: autor da tese

Figura 37 - (A): Arandelas de aço inox com filmes finos de *Collodion*, metalizados, utilizados na confecção de diversas fontes radioativas. (B): Arandelas de alumínio com filmes de *Collodion*, metalizados, utilizados como absorvedores de partículas β em fontes radioativas.

Fonte: autor da tese

4.6.2 ^{166}Ho

As amostras de óxido de Holmio, Ho_2O_3 , com pureza 99,9%, fornecido pela British Drug Houses Ltd, foram irradiadas durante 1 hora num fluxo de nêutrons térmicos de $1,0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP.

O radioisótopo de ^{166}Ho foi produzido na reação $^{165}\text{Ho}(n, \gamma) ^{166}\text{Ho}$, irradiando-se uma massa de 3,5 mg de óxido de holmio (pó), dentro de um envelope de polietileno selado e inserido num cilindro de alumínio (coelho). Após a irradiação a amostra de Ho_2O_3 foi dissolvida com 0,25 ml de solução de HCl 1:1 formando uma solução incolor.

Depois da dissolução preparamos uma solução estoque acrescentando-se mais 1,0 ml de solução 0,1 N HCl. Para preparação das fontes a serem medidas no sistema de coincidências, a solução estoque foi diluída 100 vezes com HCL 0,1 N, com esta solução foram preparadas diversas fontes de ^{166}Ho com massas entre 9 a 50 mg determinadas pelo método do picnômetro, do mesmo modo descrito na preparação das amostras de ^{64}Cu .

5. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos na padronização dos radionuclídeos ^{64}Cu e ^{166}Ho em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$, e as probabilidades de emissão gama por decaimento.

5.1 Resultados do ^{64}Cu em Sistema TAC e SCS

A seguir serão apresentados os resultados obtidos para padronização do ^{64}Cu no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ tendo sido utilizados dois sistemas eletrônicos simultaneamente para comparação dos resultados: TAC e SCS.

5.1.1 Sistema TAC

Os resultados de soluções de ^{64}Cu foram obtidos no sistema TAC variando-se a eficiência por meio de absorvedores de Collodion e de alumínio. A atividade das soluções foi determinada por meio do programa CONTAC 15 (DIAS, 2001) com tempos de medidas das fontes variando de 6000 a 20000 segundos.

Foram feitas 8 irradiações distintas seguindo-se o mesmo procedimento para obtenção das soluções radioativas conforme descrito no item 4.6.

Na medida no sistema $4\pi\beta-\gamma$ com o método TAC, pelo fato do ^{64}Cu emitir radiação beta de alta energia, não foi observada uma variação significativa na eficiência beta (ε_β), mesmo utilizando vários absorvedores sobre a fonte, por isso, para corrigir a pouca variação de ε_β , ou da ineficiência $(1-\varepsilon_\beta)$ foi aplicado no parâmetro $N_{4\pi}$ da equação (47) o fator Fk como descrito no item 3.3.1

Na Tabela 2 são apresentado os valores da eficiência $(N_c/N_\gamma)_{EC}$, o parâmetro de ineficiência $[(1 - N_c/N_\gamma) / N_c/N_\gamma]_{EC}$ e a razão $N'_{4\pi}N_\gamma/N_c$, obtidos para as 8 irradiações, para a janela gama de 1345,7 keV, com as incertezas totais e os valores do ajuste para os 76 pontos normalizados por meio das medidas no HPGe, medidos no sistema TAC.

Tabela 2 - Valores de $(N_c/N_\gamma)_\beta$, $(N_c/N_\gamma)_{EC}$, parâmetro de ineficiência $[(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)]_{EC}$, F_k e $N'_{4\pi} N_\gamma/N_c$ para a janela gama de 1345,7 keV com incerteza total e valores do ajuste para os 76 pontos normalizados medidos no sistema TAC.

Medida	$(N_c/N_\gamma)_\beta$ %	$(N_c/N_\gamma)_{EC}$ %	$[(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)]_{EC}$	F_k	$(N'_{4\pi} N_\gamma/N_c)_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cpsg}^{-1}$	σ_{total}	Ajuste
1	99,27	50,09	0,9966	1,004	2,1326	2,11	2,1308
2	98,70	43,25	1,3121	1,010	2,2837	2,97	2,3597
3	98,92	42,27	1,3656	1,006	2,4301	1,67	2,3985
4	92,17	42,22	1,3687	1,046	2,4585	3,94	2,4007
5	98,39	42,05	1,3779	1,012	2,3775	2,05	2,4074
6	99,28	40,57	1,4647	1,004	2,4484	3,02	2,4704
7	88,18	40,12	1,4923	1,071	2,4562	3,87	2,4904
8	93,16	39,94	1,5040	1,040	2,5431	2,47	2,4989
9	99,09	39,17	1,5530	1,007	2,6326	2,18	2,5344
10	98,95	38,7	1,5840	1,006	2,6511	3,00	2,5569
11	96,01	38,53	1,5956	1,032	2,4539	8,81	2,5653
12	98,95	37,84	1,6428	1,008	2,6013	3,23	2,5995
13	94,44	37,74	1,6499	1,032	2,672	2,69	2,6047
14	95,77	37,66	1,6555	1,024	2,6541	2,08	2,6088
15	97,42	37,18	1,6894	1,020	2,5166	2,17	2,6333
16	87,00	36,45	1,7433	1,112	2,6111	5,67	2,6724
17	98,49	35,62	1,8072	1,012	2,8173	2,46	2,7188
18	97,25	35,53	1,8143	1,022	2,7142	3,14	2,7239
19	99,06	35,04	1,8539	1,005	2,8467	3,49	2,7527
20	98,08	34,48	1,900	1,015	2,7544	2,43	2,7861
21	96,92	34,39	1,9079	1,025	2,6798	2,43	2,7918
22	97,56	34,36	1,9107	1,020	2,8864	2,53	2,7939
23	99,55	34,15	1,9282	1,004	2,7569	2,44	2,8066
24	99,00	34,14	1,9293	1,008	2,9599	3,14	2,8074

Medida	$(N_c/N_\gamma)_\beta$ %	$(N_c/N_\gamma)_{EC}$ %	$[(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)]_{EC}$	F_k	$(N'_{4\pi}N_\gamma/N_c)_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cpsg}^{-1}$	σ_{total}	Ajuste
25	96,15	33,76	1,9623	1,031	2,7677	2,62	2,8313
26	99,09	33,53	1,9825	1,007	2,7977	2,56	2,8459
27	88,80	33,48	1,9868	1,097	2,8047	4,99	2,8491
28	89,35	32,71	2,0576	1,093	2,9984	4,69	2,9004
29	99,73	32,33	2,0927	1,002	2,7996	3,88	2,9259
30	90,97	32,19	2,1063	1,078	2,8746	4,22	2,9357
31	89,27	31,39	2,1854	1,094	2,9311	4,95	2,9931
32	98,50	31,33	2,1922	1,012	2,8965	2,16	2,998
33/	96,70	31,11	2,2147	1,027	2,9485	2,73	3,0144
34	98,75	30,90	2,2367	1,010	2,9684	2,21	3,0303
35	98,67	30,14	2,3176	1,008	3,295	6,55	3,089
36	99,70	30,13	2,3187	1,002	3,0073	3,53	3,0898
37	97,01	29,66	2,3710	1,024	2,9894	2,31	3,1277
38	98,00	28,34	2,5283	1,017	3,2416	3,56	3,2418
39	98,70	28,17	2,5501	1,011	3,2215	4,02	3,2576
40	90,27	27,98	2,5743	1,087	3,2236	4,61	3,2752
41	92,03	27,77	2,6013	1,047	3,3405	3,16	3,2948
42	80,61	27,67	2,6141	1,189	3,214	9,62	3,3041
43	97,30	27,41	2,6483	1,015	3,4887	2,82	3,3289
44	98,69	27,27	2,6672	1,011	3,4975	2,88	3,3426
45	78,58	27,22	2,6732	1,214	3,5082	10,32	3,3469
46	98,31	26,84	2,7253	1,014	3,2205	5,77	3,3847
47	97,95	26,61	2,7581	1,012	3,556	1,76	3,4085
48	98,23	26,46	2,7800	1,010	3,3188	4,42	3,4244
49	98,01	26,33	2,7974	1,017	3,3788	2,71	3,437
50	99,57	25,39	2,9382	1,004	3,5446	2,84	3,5391
51	99,18	25,22	2,9654	1,007	3,7309	3,39	3,5589

Medida	$(N_c/N_\gamma)_\beta$ %	$(N_c/N_\gamma)_{EC}$ %	$[(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)]_{EC}$	F_k	$(N_{4\pi} N_\gamma/N_c)_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cpsg}^{-1}$	σ_{total}	Ajuste
52	98,45	24,62	3,062	1,009	3,804	12,19	3,6289
53	99,80	24,47	3,0872	1,002	3,3996	6,54	3,6472
54	98,03	24,41	3,0965	1,011	3,8356	3,48	3,654
55	98,48	24,36	3,1053	1,013	3,5444	2,82	3,6603
56	96,74	23,85	3,1935	1,019	3,9232	11,8	3,7243
57	98,39	23,6	3,2376	1,014	3,9333	3,08	3,7563
58	99,54	23,49	3,2576	1,003	3,9418	3,79	3,7708
59	99,35	23,00	3,3470	1,006	4,1055	7,41	3,8357
60	99,24	22,03	3,5400	1,007	4,0426	3,15	3,9756
61	99,54	21,59	3,6326	1,004	4,1578	10,83	4,0428
62	98,80	21,26	3,7034	1,010	4,0082	2,73	4,0942
63	99,35	21,11	3,7380	1,006	4,1933	2,1	4,1193
64	99,30	20,9	3,7856	1,006	4,033	3,05	4,1538
65	99,31	20,23	3,9432	1,006	4,2522	3,91	4,2681
66	99,45	19,68	4,0808	1,005	4,2904	2,36	4,3679
67	97,19	18,07	4,5343	1,016	4,8415	4,21	4,6968
68	98,53	17,67	4,6596	1,013	4,8258	4,43	4,7877
69	96,31	17,42	4,7399	1,034	4,6768	2,96	4,846
70	98,24	17,4	4,7482	1,016	5,0448	3,02	4,852
71	99,54	16,96	4,8959	1,004	4,8984	3,93	4,9591
72	99,13	16,26	5,1492	1,008	5,2461	4,78	5,1428
73	99,14	16,02	5,2441	1,008	5,1071	2,15	5,2117
74	99,69	15,87	5,3016	1,003	5,5994	6,62	5,2534
75	98,65	15,69	5,3727	1,008	5,6025	4,16	5,3049
76	99,46	15,58	5,4197	1,005	5,1109	4,02	5,339

Fonte: autor da tese

Na tabela 3 são apresentadas as incertezas parciais consideradas para ajuste da curva de extrapolação. Não foram consideradas as incertezas sistemáticas menores que 0,1.

Tabela 3 Incertezas parciais consideradas no ajuste da curva de extrapolação

Medida	$\sigma_{N\beta}$ %	$\sigma_{Nc/Ny}$ %	$\sigma_{BG\gamma}$ %	σ_{Fk} %	σ_{Fnorm} %
1	0,03	2,01	0,52	0,12	0,36
2	0,03	2,79	0,81	0,29	0,53
3	0,02	1,55	0,41	0,18	0,43
4	0,03	3,63	0,52	1,39	0,36
5	0,02	1,83	0,49	0,38	0,67
6	0,03	2,95	0,52	0,12	0,36
7	0,02	3,16	0,52	2,14	0,36
8	0,02	2,07	0,41	1,21	0,43
9	0,03	2,00	0,49	0,23	0,67
10	0,02	2,86	0,89	0,18	0
11	0,02	8,74	0,45	0,95	0,31
12	0,03	3,07	0,81	0,24	0,53
13	0,02	2,35	0,89	0,97	0
14	0,02	1,85	0,41	0,73	0,43
15	0,02	1,88	0,45	0,61	0,77
16	0,02	4,52	0,45	3,37	0,31
17	0,03	2,28	0,49	0,41	0,67
18	0,03	2,91	0,81	0,66	0,53
19	0,02	3,37	0,89	0,16	0
20	0,03	2,27	0,62	0,46	0,42
21	0,02	2,14	0,45	0,74	0,77
22	0,03	2,29	0,49	0,69	0,67
23	0,03	2,32	0,62	0,11	0,42
24	0,03	3,01	0,49	0,28	0,67
25	0,02	2,33	0,62	0,94	0,42
26	0,03	2,44	0,62	0,22	0,42
27	0,02	3,98	0,62	2,92	0,42
28	0,02	3,12	0,49	3,40	0,67
29	0,05	3,78	0,45	0,07	0,77
30	0,02	3,48	0,45	2,33	0,31
31	0,02	4,03	0,45	2,82	0,31
32	0,02	1,93	0,45	0,37	0,77
33	0,02	2,49	0,62	0,82	0,42
34	0,02	2,00	0,45	0,31	0,77
35	0,02	6,49	0,89	0,23	0
36	0,03	3,42	0,45	0,07	0,77

Medida	$\sigma_{N\beta}$ %	$\sigma_{Nc/Ny}$ %	$\sigma_{BG\gamma}$ %	σ_{Fk} %	σ_{Fnorm} %
37	0,02	2,01	0,45	0,72	0,77
38	0,03	3,39	0,81	0,50	0,53
39	0,03	3,89	0,81	0,32	0,53
40	0,02	3,73	0,62	2,60	0,42
41	0,02	2,68	0,89	1,41	0
42	0,03	7,72	0,62	5,68	0,42
43	0,02	2,64	0,89	0,46	0
44	0,03	2,72	0,49	0,43	0,67
45	0,02	5,11	0,49	8,93	0,67
46	0,05	5,67	0,81	0,43	0,53
47	0,02	1,48	0,89	0,35	0
48	0,03	4,36	0,52	0,30	0,36
49	0,03	2,51	0,45	0,50	0,77
50	0,03	2,69	0,45	0,11	0,77
51	0,03	3,27	0,49	0,28	0,67
52	0,08	12,15	0,89	0,26	0
53	0,05	6,49	0,81	0,05	0
54	0,03	3,35	0,89	0,34	0
55	0,03	2,65	0,45	0,39	0,77
56	0,08	11,75	0,89	0,56	0
57	0,03	2,91	0,49	0,57	0,67
58	0,03	3,74	0,41	0,08	0,43
59	0,02	7,36	0,49	0,23	0,67
60	0,03	3,05	0,62	0,20	0,42
61	0,10	10,79	0,45	0,12	0,77
62	0,02	2,56	0,45	0,31	0,77
63	0,03	1,86	0,81	0,17	0,53
64	0,03	2,91	0,45	0,18	0,77
65	0,03	3,87	0,45	0,18	0,31
66	0,02	2,18	0,45	0,14	0,77
67	0,08	4,09	0,89	0,48	0
68	0,03	4,35	0,62	0,39	0,42
69	0,02	2,73	0,45	1,01	0,31
70	0,03	2,82	0,49	0,70	0,67
71	0,03	3,83	0,45	0,12	0,77
72	0,03	4,72	0,62	0,23	0,42
73	0,02	1,94	0,45	0,23	0,77
74	0,02	6,57	0,49	0,12	0,67
75	0,03	4,06	0,89	0,23	0
76	0,03	3,92	0,45	0,15	0,77

Fonte: Autor da tese

Onde: $\sigma_{N\beta}$ é a incerteza na contagem beta
 $\sigma_{Nc/N\gamma}$ incerteza estatística no parâmetro $Nc/N\gamma$;
 $\sigma_{BG\gamma}$ incerteza estatística na radiação de fundo gama;
 σ_{FK} incerteza no fator de correção Kawada;
 σ_{Fnorm} incerteza no fator de normalização pela medida no HPGe.

Na Tabela 4 são apresentados os valores obtidos nas medidas no espectrômetro HPGe para determinação dos fatores de normalização utilizados para determinação da curva de extrapolação das oito irradiações consideradas.

Tabela 4 – Valores obtidos no espectrômetro HPGe para determinação do fator de normalização para as oito irradiações com as incertezas consideradas.

Irrad/Data	At HPGe cps g ⁻¹	Fnorm	σ_{efic}	σ_{area}	σ_{Geom}
1/24-11-15	6652 ± 78	1,0	0,62	0,19	0,83
2/22-11-16	2882 ± 41	2,308 ± 0,018		0,75	
3/17-01-17	8460 ± 103	0,7863 ± 0,0024		0,24	
4/08-11-16	8891 ± 121	0,7481 ± 0,0050		0,64	
5/28-06-16	8321 ± 107	0,7994 ± 0,0042		0,49	
6/23-02-16	3753 ± 52	1,7722 ± 0,0064		0,31	
7/09-08-16	13929 ± 174	0,4776 ± 0,0020		0,37	
8/18-10-16	2620 ± 32	2,539 ± 0,011		0,39	

Fonte: autor da tese

$$\text{Sendo que: At HPGe} = \frac{S(E_{\gamma i})}{\varepsilon(E_{\gamma i})}$$

Onde $S(E_{\gamma i})$ = area do fotopico por unidade de tempo e de massa, na data de referência considerada, $\varepsilon(E_{\gamma i})$ eficiencia de pico

Onde: σ_{efic} incerteza na eficiência de pico do gama de 1345,77 keV,

σ_{area} incerteza na área do pico do gama de 1345,77 keV

σ_{Geom} incerteza no fator de atenuação na ampola,

As incertezas menores que 0,1% foram desprezadas.

A curva de extrapolação de todas as irradiações normalizadas por meio das medidas no espectrômetro HPGe é apresentada na Figura 38. A eficiência de captura de elétrons foi variada de 50% para 15%.

A taxa de desintegração (atividade absoluta) foi obtida por um ajuste de mínimos quadrados usando o código LINFIT. Um total de 76 pontos foram incluídos no ajuste.

A incerteza estatística de contagem na determinação da eficiência de captura de elétrons foi severamente aumentada pela baixa intensidade do raio-gama de 1345,7 keV. Os parâmetros do ajuste são apresentados na Tabela 5.

Tabela 5 - Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para os 76 pontos considerados com sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros do Ajuste		Matriz de Covariância	
a_0	$(1,408 \pm 0,027) \times 10^6$	$7,49 \times 10^8$	
a_1	$(7,25 \pm 0,12) \times 10^5$	$-3,06 \times 10^8$	$1,46 \times 10^8$

Fonte: autor da tese

Figura 38- Curva de extrapolação $(N_{4\pi}^p N_\gamma / N_c) / m$ como função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)_{1345}$ de 8 irradiações normalizadas. Os pontos com as barras de erros são os dados experimentais e a linha contínua é curva de extrapolação ajustada.

Fonte: autor da tese.

A Figura 39 mostra os resíduos relativos entre os pontos experimentais. A flutuação dos pontos experimentais está de acordo com a distribuição de resíduos esperada, considerando as incertezas apresentadas dentro de um limite de confiança de 68% (um desvio padrão).

Figura 39 - Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados da curva de extrapolação para a janela gama de 1345,7 keV.

Fonte: autor da tese.

As principais incertezas envolvidas na medição foram as estatísticas de contagem na eficiência de captura de elétrons e a incerteza no fator de Kawada, incluída no ajuste.

A atividade obtida foi de $(1,408 \pm 0,027)$ MBq g⁻¹.

5.1.2 Sistema SCS

Com a medida de três fontes da irradiação realizada na data de 24/11/2015, com o sistema SCS, foi possível aplicar a variação das eficiências beta (ε_β) e de captura (ε_{EC}) por discriminação eletrônica. Neste caso a eficiência beta variou juntamente com a eficiência de captura, tendo sido aplicado um ajuste biparamétrico para determinação da atividade. Na tabela 6 são apresentados os valores de $N_{4\pi} / \varepsilon_\beta \varepsilon_{EC}$ com a incerteza total, os parâmetros de ineficiência $(1 - \varepsilon_{EC}) / \varepsilon_{EC}$ e $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta$ e os valores do ajuste biparamétrico.

Tabela 6 - São apresentados os valores de $N_{4\pi}/\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{EC}$ com a incerteza total, os parâmetros de ineficiência $(1 - \varepsilon_{EC})/\varepsilon_{EC}$, $(1 - \varepsilon_{\beta})/\varepsilon_{\beta}$ e os valores do ajuste biparamétrico

Medida	$(1 - \varepsilon_{EC})/\varepsilon_{EC}$	$(1 - \varepsilon_{\beta})/\varepsilon_{\beta}$	$N_{4\pi}/\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$	σ_{total} %	Ajuste $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$
1	2,038	0,0208	3,097	2,37	3,071
2	2,080	0,0211	3,127	2,39	3,105
3	2,145	0,0214	3,181	2,41	3,158
4	2,184	0,0218	3,207	2,42	3,190
5	2,230	0,0227	3,245	2,44	3,228
6	2,265	0,0237	3,273	2,45	3,257
7	2,276	0,0250	3,278	2,46	3,267
8	2,312	0,0272	3,310	2,47	3,297
9	2,327	0,0299	3,321	2,48	3,311
10	2,366	0,0332	3,356	2,49	3,345
11	2,397	0,0373	3,385	2,50	3,373
12	2,446	0,0422	3,432	2,51	3,416
13	2,471	0,0477	3,454	2,52	3,440
14	2,500	0,0540	3,481	2,53	3,468
15	2,531	0,0615	3,513	2,54	3,499
16	2,561	0,0693	3,542	2,55	3,528
17	2,601	0,0782	3,583	2,57	3,567
18	2,624	0,0878	3,608	2,58	3,593
19	2,653	0,0981	3,639	2,59	3,623

Medida	$(1 - \varepsilon_{EC}) / \varepsilon_{EC}$	$(1 - \varepsilon_{\beta}) / \varepsilon_{\beta}$	$N_{4\pi} / \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$	σ_{total} %	Ajuste $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$
20	2,685	0,1091	3,673	2,60	3,657
21	1,395	0,0238	2,546	2,54	2,553
22	1,445	0,0242	2,589	2,57	2,594
23	1,476	0,0246	2,611	2,59	2,619
24	1,511	0,0251	2,638	2,61	2,648
25	1,546	0,0258	2,665	2,63	2,676
26	1,566	0,0268	2,681	2,64	2,693
27	1,622	0,0283	2,733	2,68	2,739
28	1,633	0,0303	2,741	2,68	2,750
29	1,679	0,0328	2,784	2,70	2,789
30	1,714	0,0360	2,816	2,72	2,820
31	1,755	0,0401	2,855	2,75	2,856
32	1,781	0,0450	2,879	2,76	2,880
33	1,812	0,0507	2,909	2,78	2,909
34	1,825	0,0570	2,920	2,79	2,924
35	1,871	0,0642	2,965	2,81	2,966
36	1,903	0,0723	2,998	2,83	2,998
37	1,944	0,0811	3,039	2,85	3,038
38	1,999	0,0906	3,095	2,87	3,089
39	2,032	0,1013	3,130	2,89	3,123
40	2,098	0,1133	3,202	2,93	3,185

Medida	$(1 - \varepsilon_{EC}) / \varepsilon_{EC}$	$(1 - \varepsilon_{\beta}) / \varepsilon_{\beta}$	$N_{4\pi} / \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{EC}$ $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$	σ_{total} %	Ajuste $\times 10^6 \text{ cps g}^{-1}$
41	2,153	0,0259	3,158	1,35	3,168
42	2,210	0,0267	3,201	1,37	3,214
43	2,277	0,0280	3,255	1,38	3,269
44	2,336	0,0299	3,302	1,39	3,319
45	2,394	0,0325	3,349	1,40	3,367
46	2,448	0,0358	3,396	1,41	3,413
47	2,494	0,0400	3,436	1,42	3,454
48	2,537	0,0450	3,472	1,43	3,492
49	2,602	0,0511	3,532	1,44	3,549
50	2,651	0,0578	3,576	1,45	3,593
51	2,711	0,0656	3,632	1,46	3,647
52	2,759	0,0740	3,676	1,47	3,692
53	2,807	0,0833	3,721	1,48	3,737
54	2,879	0,0933	3,789	1,50	3,802
55	2,935	0,1043	3,844	1,51	3,855
56	2,988	0,1159	3,896	1,52	3,907
57	3,033	0,1284	3,939	1,52	3,952
58	3,125	0,1420	4,031	1,53	4,036
59	3,196	0,1563	4,102	1,55	4,103
60	3,267	0,1714	4,175	1,56	4,172

Fonte: autor da tese

As eficiências beta (ε_β) e de captura (ε_{EC}), variaram de 98 % a 85% e de 42 % a 23 %, respectivamente. Na tabela 7 são apresentados os parâmetros do ajuste biparamétrico.

Tabela 7 - Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação biparamétrica da atividade

Parâmetros do Ajuste Biparamétrico	
a_0	$(1,408 \pm 0,009) 10^6$
a_1	$(8,09 \pm 0,0,05) \times 10^5$
a_2	$(7,04 \pm 0,6) \times 10^5$

Fonte: autor da tese

A atividade final determinada pelo ajuste das três fontes, medidas pelo sistema SCS com discriminação eletrônica, resultou no valor de $(1,408 \pm 0,009) \text{ MBq g}^{-1}$ que concorda dentro da incerteza experimental com o valor obtido no sistema TAC.

5.1.3 Comparação de dados experimentais com simulação de Monte Carlo

Foi aplicado o método de simulação de Monte Carlo por meio do programa Esquema versão 155, para comparação com as medidas experimentais. A curva de extrapolação determinada pela simulação é apresentada na Figura 40 juntamente com os dados experimentais normalizados, esta curva corresponde às medidas referentes ao ramo EC- γ , tendo sido aplicado o Fator Kawada para correção da eficiência beta .

Figura 40 -Curva de extrapolação obtida pela simulação por Monte Carlo é a linha contínua, e os pontos coloridos são os dados experimentais de várias irradiações, as medidas são referentes ao ramo de captura, normalizadas

Fonte: autor da tese.

Como pode ser visto, a curva prevista pelo programa Esquema é concordante com o comportamento dos dados experimentais mostrando a mesma tendência. Na Figura 41 é apresentado o gráfico dos resíduos relativos em porcentagem mostrando que não há nenhuma tendência.

Figura 41 - Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais normalizados e o cálculo de Monte Carlo para a janela gama de 1345,7 keV.

5.1.4 Curva de calibração do espectrómetro HPGe para ampolas para distância fonte –detector de 17,8 cm

Para a determinação da probabilidade de emissão gama do ^{64}Cu , foi determinada a curva de calibração do espectrómetro HPGe para ampolas, sendo utilizadas ampolas padrão de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs de modo a abranger a faixa de energias entre 121,78 keV a 1408 keV. A distância fonte detector foi de 17,8 cm.

O programa ALPINO 1 foi empregado para análise das áreas dos fotopicos em estudo, permitindo determinar a eficiência de pico das energias gama das 4 fontes padrões, ou a atividade da fonte radioativa, quando é fornecida a eficiência.

Na tabela 8 são apresentados os valores de eficiência experimental com a respectiva incerteza, os valores do ajuste polinomial de grau 3 e os resíduos percentuais relativos.

Tabela 8- Valores da Energia gama, eficiência de pico experimental com a respectiva incerteza, valores ajustados e resíduos percentuais relativos.

Energia γ (keV)	$\varepsilon_{\text{exp Pico}}$	σ_{tt} %	Ajuste	Resíduos Relativos %
121,78	0,002910	2,58	0,002940	1,02
244,7	0,001870	2,26	0,001833	-2,01
276,4	0,001700	2,51	0,001649	-3,09
302,85	0,001540	2,28	0,001518	-1,43
344,28	0,001340	2,03	0,001347	0,52
356,02	0,001300	2,13	0,001305	0,36
383,85	0,001220	2,32	0,001214	-0,53
411,13	0,001140	2,07	0,001135	-0,43
443,96	0,001040	2,01	0,001053	1,20
661,61	0,000695	1,66	0,000709	1,93
778,9	0,000597	1,75	0,000605	1,27
867,39	0,000551	1,85	0,000546	-0,93
964,05	0,000497	1,68	0,000495	-0,39
1112,09	0,000445	1,65	0,000436	-2,05
1173,24	0,000421	1,20	0,000417	-1,07
1332,51	0,000374	1,16	0,000375	0,33
1408,02	0,000356	1,60	0,000359	0,96

Fonte: autor da tese.

Onde σ_{TT} é a incerteza total.

Na Figura 42 a curva de calibração em eficiência versus energia gama, para as ampolas padrão é apresentada. Os pontos cheios correspondem aos dados experimentais já consideradas as barras de incerteza e a linha continua corresponde à curva ajustada por um polinômio de grau 3 com um χ^2 reduzido = 1,03.

Figura 42 - Curva de calibração em eficiência de pico do detector HPGe para ampolas padrão para distância fonte detector de 17,8 cm, os pontos são os dados experimentais e a linha contínua é a curva ajustada.

Fonte: autor da tese.

Na figura 43 é apresentado o gráfico de resíduos percentuais relativos entre os valores experimentais e os dados do ajuste polinomial, que apresentou um χ^2 reduzido=1,03.

Figura 43- Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados para distância fonte-detector de 17,8 cm em uso de absorvedores

Fonte: autor da tese.

O gráfico dos resíduos mostra um bom acordo com o ajuste dentro as incertezas experimentais.

Na Tabela 9 são apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiência do espectrômetro e respectiva matriz de covariância

Tabela 9 - Parâmetros do ajuste da curva de eficiência do espectrômetro HPGe e sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros do Ajuste		Matriz de Covariância			
a_0	$-20,72 \pm 2,65$	7,02			
a_1	$8,522 \pm 1,315$	-3,48	1,73		
a_2	$-1,515 \pm 0,216$	0,579	-0,284	0,046632	
a_3	$0,08041 \pm 0,01174$	-0,0308	0,0154	-0,00253	0,000138

Fonte: autor da tese.

5.1.5 Probabilidade de emissão por decaimento da transição gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu

A probabilidade de emissão gama por decaimento do fóton gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu foi determinada pelas medidas das ampolas de ^{64}Cu preparadas juntamente com as fontes em Collodion, uma para cada irradiação.

Na Tabela 10 são apresentados os valores da atividade determinada no sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$, o valor da área obtido com o espectrômetro HPGe, correspondente a irradiação utilizada para normalização, e a eficiência de pico com respectivas incertezas.

Tabela 10 - - Intensidade gama absoluta do fóton de 1345,7 keV.

I_γ %	Atividade $4\pi\beta\text{--}\gamma$ (MBq g ⁻¹)	At HPGe (cps g ⁻¹)	Eficiência de pico γ x10 ⁻⁴
(0,472 ± 0,010)	(1,408 ± 0,027)	(6652 ± 78)	(3,724 ± 0,023)

Fonte: autor da tese

A probabilidade de emissão por decaimento do raio-gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu determinada após a normalização foi de (0,472 ± 0,010)%.

Na Tabela 11 são apresentados o valor determinado neste trabalho para a probabilidade de emissão gama por decaimento do fóton de 1345,7 keV comparado com dados da literatura, estando em concordância com os demais valores dentro da incerteza experimental e com o valor recomendado por BÉ et al (2012), com exceção do valor de QAIM et al, (2007).

Tabela 11 - Comparação da probabilidade de emissão por decaimento de 1345,7 keV do ^{64}Cu obtida no presente trabalho, com valores da literatura.

Referência	Valor intensidade gama absoluta*
CHRISTMAS et al. (1983)	0.471(11)
KAWADA (1986)	0.487 (20)
QAIM et al. (2007)	0.543(3)
WANKE et al. (2010)	0.474 (5)
LUCA et al. (2012)	0.481 (17)
AMIOT et al. (2012)	0.472 (12)
CMI, BÉ et al. (2012)	0.476 (6)
PIBIDA et al. (2017)	0.469 (4)
Este trabalho	0.472 (10)
Avaliação, BÉ et al (2012)	0.4748 (33)

* Incerteza absoluta entre parênteses

Fonte: BÉ et al (2011) e autor da tese

Na Figura 44 os dados da tabela são apresentados de forma gráfica, para melhor visualização.

Figura 44 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho em destaque para radiação gama de 1345,7 keV do ^{64}Cu

Fonte: autor da tese

Na Tabela 12 são apresentadas as incertezas parciais típicas da atividade medidas no sistema de coincidências por meio da técnica de extrapolação e na determinação da probabilidade de emissão de raios gama, em porcentagem.

Tabela 12 – Contribuição típica nas incertezas das atividades medidas no sistema de coincidências por meio da técnica de extrapolação e na determinação da probabilidade de emissão de raios gama, em porcentagem.

Componentes	Incerteza (%)
Estatística de contagem na eficiência de captura	1,48 - 12,15
Fator Kawada	0,07 - 8,93
Curva de Extrapolação	1,92
Eficiência HPGe (1345.7 keV)	0,62
Estatística de contagem na área do pico de 1345.7 keV	0,19
Geometria da Ampola	0,83

Fonte: autor da tese

5.2 Resultados do ^{166}Ho em Sistema SCS

A padronização do ^{166}Ho , como descrito no item 4.2 foi feita no sistema $4\pi\beta-\gamma$ utilizando dois tipos de detectores gama: um cristal de NaI(Tl) com 54 x 54 mm de diâmetro, utilizado na medida da janela gama de 80,57 keV. O outro um cristal de NaI(Tl) de 76 x 76 mm de diâmetro utilizado para medida da janela gama de 1379,45 keV, ambos em coincidência com o contador proporcional 4π operado a gás fluente à pressão de 0,1 MPa para medida da radiação beta emitida.

A eficiência beta foi variada no intervalo de 95,11 a 76,30%, utilizando absorvedores de *Collodion* e de alumínio, nas medidas onde foi selecionada a radiação gama de 80,57 keV e variada de 99,74 % a 77,30 % nas medidas selecionando a energia gama de 1379,45 keV.

Na Tabela 13 são apresentados os dados dos valores da eficiência N_c/N_γ , o parâmetro de ineficiência $[(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)]$ e a razão $N_\beta N_\gamma/N_c$, obtidos para a janela de 80,57 keV com incertezas consideradas. Estes dados correspondem a duas soluções distintas, onde os dados foram normalizados por meio da medida da radiação gama de 1379,45 keV no espectrômetro HPGe

Tabela 13 - Dados referentes a eficiência N_c/N_γ , ao parâmetro de ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e $N_\beta N_\gamma/N_c$ com as respectivas incertezas, para a janela de 80,57 keV

Medida	N_c/N_γ	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$	σ_{TT}	σ_{efic}	σ_{BG_γ}	σ_{N_β}
	%		cps mg ⁻¹	%	%	%	%
1	95,11	0,04892	353,80	0,41	0,19	0,33	0,02
2	94,07	0,05930	354,92	0,37	0,23	0,20	0,03
3	93,82	0,06177	355,95	0,45	0,25	0,34	0,03
4	93,26	0,06739	355,71	0,47	0,27	0,35	0,03
5	92,76	0,07242	355,96	0,39	0,25	0,24	0,03
6	92,39	0,07609	359,38	0,38	0,20	0,24	0,02
7	90,86	0,09139	362,17	0,48	0,33	0,27	0,03
8	88,57	0,11430	366,59	0,69	0,25	0,25	0,02
9	87,42	0,12580	366,52	0,39	0,26	0,25	0,02
10	86,59	0,13412	371,01	0,83	0,49	0,63	0,04
11	86,50	0,13500	371,52	0,61	0,13	0,19	0,01
12	84,40	0,15600	372,78	0,71	0,29	0,26	0,02
13	83,13	0,16873	373,94	0,65	0,42	0,43	0,03
14	79,94	0,20063	381,87	0,49	0,33	0,26	0,02
15	76,21	0,23790	392,04	0,72	0,31	0,24	0,02
16	75,45	0,24550	387,40	0,62	0,23	0,11	0,01
17	73,66	0,26340	390,97	0,83	0,44	0,34	0,03

Fonte: autor da tese

Onde:

σ_{TT} é a incerteza total

σ_{efic} é a incerteza no parâmetro N_c/N_γ

$\sigma_{BG\gamma}$ é a incerteza na radiação de fundo gama

$\sigma_{N\beta}$ é a incerteza na contagem beta

As incertezas sistemáticas referentes à massa e decaimento foram adicionadas a σ_{TT} (incerteza total) após a determinação da curva de extrapolação.

A curva de extrapolação da eficiência foi determinada pelo método de mínimos quadrados por meio do programa LINFIT (DIAS, 1999). Na Tabela 14 são apresentados os parâmetros do ajuste com respectiva matriz de covariância.

Tabela 14 - Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para a janela de 80,57 keV com sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros do Ajuste $\times 10^3$		Matriz de Covariância $\times 10^6$	
a_0	$344,33 \pm 0,82$	0,68	
a_1	$184,76 \pm 7,00$	-5,05	48,95

Fonte: autor da tese

Na Figura 45 é apresentada a curva de extrapolação linear da eficiência de $(N_\beta N_\gamma / N_c)_{80}$ em função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)_{80}$. Os pontos com as barras de erros são os pontos experimentais e a linha contínua é a curva de extrapolação ajustada.

Figura 45 - Curva de extrapolação de $(N_\beta N_\gamma / N_c)_{80}$ como função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)_{80}$. Os pontos com as barras de erros são os pontos experimentais e a linha contínua é a curva de extrapolação ajustada.

Fonte: autor da tese.

Na Figura 46 são apresentados os resíduos relativos entre os pontos experimentais e o ajuste polinomial de grau 1, que apresentou um χ^2 reduzido = 0,7.

Figura 46 - Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados da curva de extrapolação para a janela de 80,57 keV

Fonte: autor da tese.

Como pode ser visto no gráfico dos resíduos relativos, não há nenhum desvio visível, dentro da incerteza experimental com um limite de confiança de 68% (um desvio padrão).

Na Tabela 15 são apresentados os valores da eficiência N_c/N_γ , o parâmetro de ineficiência $(1 - N_c/N_\gamma) / N_c/N_\gamma$ e a razão $N_\beta N_\gamma / N_c$, obtidos para a janela de 1379,45 keV com as incertezas consideradas.

Tabela 15 - Dados referentes a eficiência N_c/N_γ , ao parâmetro de ineficiência e a $N_\beta N_\gamma/N_c$, com as respectivas incertezas, para a janela 1379,45 keV do ^{166}Ho

Medida	(N_c/N_γ) %	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ cps mg^{-1}	σ_{TT} %	σ_{efic} %	$\sigma_{\text{BG}_\gamma}$ %	σ_{NB} %
1	99,74	0,002656	243,63	0,83	0,62	0,49	0,03
2	98,43	0,015913	244,86	0,90	0,71	0,49	0,03
3	97,19	0,028943	249,56	1,01	0,84	0,51	0,03
4	97,00	0,0309	249,27	0,98	0,81	0,5	0,03
5	95,73	0,044589	245,98	1,05	0,89	0,5	0,03
6	94,44	0,058914	249,26	1,29	1,14	0,56	0,03
7	93,97	0,064184	244,59	1,20	1,05	0,52	0,03
8	91,85	0,088711	256,84	1,12	0,96	0,51	0,03
9	90,67	0,10287	255,10	1,30	1,19	0,46	0,03
10	90,63	0,10343	261,33	1,24	1,05	0,6	0,02
11	85,72	0,16654	271,19	1,72	1,6	0,57	0,02
12	85,13	0,17465	267,83	1,22	1,06	0,55	0,02
13	84,43	0,18438	266,57	1,22	1,09	0,48	0,02
14	83,57	0,19661	274,00	1,31	1,16	0,57	0,03
15	82,02	0,21917	273,83	1,27	1,13	0,54	0,02
16	82,01	0,21938	271,90	1,44	1,29	0,59	0,02
17	82,00	0,21954	271,28	1,19	1,07	0,44	0,02
18	81,90	0,22104	276,10	1,34	1,19	0,56	0,02
19	81,50	0,22703	273,06	1,38	1,24	0,57	0,02
20	79,18	0,26295	283,43	1,76	1,66	0,52	0,03
21	78,47	0,27442	289,66	1,40	1,27	0,55	0,02
22	77,30	0,29372	292,59	1,51	1,38	0,57	0,02

Fonte: autor da tese

A curva de extrapolação da eficiência foi determinada pelo método de mínimos quadrados por meio do programa LINFIT tendo sido ajustado um polinômio de grau 2,

com um χ^2 reduzido igual a 0,91. Na Tabela 16 são apresentados os parâmetros do ajuste com respectiva matriz de correlação.

Tabela 16 - Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação da eficiência para a janela de 1379,45 keV com sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros do Ajuste x 10^3		Matriz de Covariância x 10^6		
a_0	$243,91 \pm 1,32$	1,75		
a_1	$93,84 \pm 28,97$	-29,82	839,15	
a_2	$218,60 \pm 109,10$	94,78	-3063,37	11907,30

Fonte: autor da tese

Na Figura 47 são apresentados a curva de extrapolação $(N_\beta N_\gamma / N_c)_{1379}$ em função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)_{1379}$, os pontos experimentais com respectivas incertezas e a curva ajustada.

Figura 47 - Curva de extrapolação $(N_\beta N_\gamma / N_c)_{1379}$ vs. $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)_{1379}$. Os pontos com as barras de erros são os pontos experimentais e a linha contínua é a curva de extrapolação ajustada.

Fonte: autor da tese

Na Figura 48 são apresentados os resíduos relativos entre os pontos experimentais e o ajuste, mostrando um bom acordo dentro das incertezas experimentais.

Figura 48- Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados da curva de extrapolação para a janela de 1379,45 keV.

Fonte: autor da tese.

5.2.1 Comparação de dados experimentais com simulação de Monte Carlo

O comportamento da curva de extrapolação para o sistema $4\pi\beta-\gamma$ em que foi selecionada a radiação gama de 1379,45 keV foi comparado com a simulação de Monte Carlo fornecida pelo programa Esquema. Na figura 47 é apresentada esta curva juntamente com os dados experimentais normalizados. Como pode ser visto, a curva predita por Monte Carlo segue o comportamento dos dados experimentais.

Figura 49 - Curva de extrapolação obtida pela simulação por Monte Carlo é a linha contínua, e os pontos pretos são os dados experimentais da medida em que foi selecionada a radiação gama de 1379,45 keV

Fonte: autor da tese

Na Figura 50 são apresentados os resíduos relativos entre os valores experimentais e os ajustados por Monte Carlo para radiação gama de 1379,45 keV, mostrando um bom acordo dentro das incertezas experimentais.

Figura 50 - Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados por Monte Carlo para radiação gama de 1379,45 keV

Fonte: autor da tese

5.2.2 Curva de calibração do espectrômetro HPGe com absorvedor de alumínio para ampolas

A curva de calibração em eficiência de pico do espectrômetro gama para medida das intensidades gama do ^{166}Ho , foi realizada utilizando-se um absorvedor de alumínio de 7,0 mm de espessura para atenuar a radiação beta de alta energia emitidas pelo ^{166}Ho (1773,9 keV e 1854,5 keV).

Na Tabela 17 são apresentados os valores das eficiências de pico com incerteza total (σ_{tt}), os valores da curva ajustada e os valores da eficiência de pico para a geometria de medida determinados por meio da simulação de Monte Carlo já descrita anteriormente. Nesta tabela são também apresentados os resíduos relativos entre os dados experimentais e os valores da curva ajustada por meio de um polinômio de grau 4, que foi escolhido em função do χ^2 reduzido igual a 1,07.

Tabela 17- Valores da Energia gama, eficiência de pico experimental, valores ajustados, resíduos relativos e eficiência de pico determinado por Monte Carlo com as respectivas incertezas e razão entre eficiência experimental e de Monte Carlo obtidos com as ampolas padrão

Energia γ (keV)	$\epsilon_{\text{exp Pico}}$	σ_{tt} %	Ajuste	Resíduos Relativos %	ϵ_{MC}	σ_{est} %	Razão $\epsilon_{\text{exp}} / \epsilon_{\text{MC}}$
59,54	0,0019590	2,73	0,0019263	-1,70	0,0020863	0,49	1,06
80,89	0,0022391	3,12	0,0023030	2,77	0,0022999	0,51	1,03
121,78	0,0022536	3,25	0,0022734	0,87	0,0022654	0,47	1,01
244,7	0,0015738	2,8	0,0014885	-5,73	0,0015301	0,57	0,97
276,4	0,0013457	2,77	0,0013466	0,07	0,0013703	0,47	1,02
302,85	0,0012504	2,49	0,0012413	-0,73	0,0012532	0,61	1,00
344,28	0,0011210	2,63	0,0011079	-1,18	0,0011115	0,67	0,99
356,02	0,0010813	2,4	0,0010739	-0,68	0,0010760	0,64	1,00
383,85	0,0010045	2,58	0,0010021	-0,24	0,0010022	0,68	1,00
411,13	0,0008966	2,58	0,0009413	4,75	0,0009415	0,73	1,05
443,96	0,0008664	2,54	0,0008765	1,16	0,0008746	0,75	1,01
661,61	0,0005956	2,01	0,0006079	2,02	0,0006085	0,49	1,02
778,9	0,0005334	2,27	0,0005257	-1,46	0,0005246	0,97	0,98
867,39	0,0004832	2,27	0,0004786	-0,96	0,0004749	1,02	0,98
964,05	0,0004411	2,14	0,0004367	-1,01	0,0004373	1,07	0,99
1112,09	0,0003935	2,11	0,0003873	-1,61	0,0003868	1,14	0,98
1173,24	0,0003711	1,66	0,0003705	-0,19	0,0003732	0,70	1,01
1332,51	0,0003326	1,64	0,0003327	0,03	0,0003336	1,16	1,00
1408,02	0,0003145	2,07	0,0003169	0,77	0,0003205	1,25	1,02

Fonte: autor da tese.

Onde σ_{TT} é a incerteza total e σ_{est} é a incerteza estatística dada por Monte Carlo.

Na Tabela 18 são apresentados os parâmetros do ajuste da curva de eficiência do espectrômetro com absorvedor de alumínio e respectiva matriz de covariância

Tabela 18 - Parâmetros do ajuste da curva de eficiência do espectrômetro HPGe e sua respectiva matriz de covariância.

Parâmetros do Ajuste		Matriz de Covariância				
a_0	$-58,32 \pm 10,1$	101				
a_1	$33,76 \pm 7,16$	-71,9	51,2			
a_2	$-7,886 \pm 1,89$	18,9	-13,5	3,55		
a_3	$0,7913 \pm 0,2183$	-2,18	1,56	-0,411	0,0477	
a_4	$-0,02957 \pm 0,00939$	9,32E-02	-0,0667	0,0176	-0,205	$8,81 \times 10^{-5}$

Fonte: autor da tese.

Na Figura 51 é apresentada a curva de calibração em eficiência versus energia gama, para as ampolas padrão determinada, com absorvedor de alumínio de 7,0 mm de espessura, Os triângulos são os pontos experimentais, os quadrados vermelhos são os dados obtidos por Monte Carlo e a linha continua é a curva ajustada com polinômio de 4º grau.

Figura 51 - Curva de calibração do espectrômetro HPGe , com absorvedor de alumínio de 7,0 mm de espessura, os triângulos são os pontos experimentais, os quadrados vermelhos são os dados obtidos por Monte Carlo e a linha contínua é a curva ajustada com polinômio de 4º grau.

Fonte autor da tese

Na Figura 52 são apresentados o gráfico dos resíduos relativos entre os dados experimentais e os pontos ajustados, neste caso também observa-se um bom acordo dentro da incerteza experimental.

Figura 52 - Resíduos relativos (%) entre os valores experimentais e os ajustados da curva de eficiência do espectrômetro HPGe

Fonte autor da tese

5.2.2.1 Fatores de correção para efeito soma

Os fatores de correção efeito soma para os radionuclídeos ^{152}Eu , ^{133}Ba , ^{60}Co e ^{166}Ho , aplicados na determinação da eficiência de pico experimental para determinação das curvas de calibração do espectrômetro HPGe nas duas geometrias utilizadas (com e sem absorvedor de alumínio) e para determinação das intensidades gama determinadas, calculados por meio do programa NUCS8, são apresentados na Tabela 19. Podemos observar que este efeito é pequeno para a distância fonte detector utilizada neste trabalho.

Tabela 19 - Fatores de correção para efeito soma para as duas geometrias usadas, com e sem absorvedor de alumínio.

Nuclídeo	Energia g keV	Efeito soma sem abs	σ_{est} %	Efeito soma com abs	σ_{est} %
¹⁵² Eu	121,78	0,9934	0,13	0,9939	0,12
	244,70	0,9793	0,41	0,9806	0,39
	344,28	0,9971	0,06	0,9931	0,14
	411,13	0,9948	0,10	0,9854	0,29
	443,96	0,9923	0,15	0,9937	0,13
	778,90	0,9950	0,10	0,9943	0,11
	867,39	0,9923	0,15	0,9938	0,12
	964,05	0,9882	0,24	0,9902	0,20
	1112,10	0,9963	0,07	0,9983	0,03
	1408,03	1,0133	0,27	1,0154	0,31
¹³³ Ba	80,90			0,9948	0,10
	276,40	0,9969	0,06	0,99554	0,09
	302,85	1,0029	0,06	1,00139	0,03
	356,02	0,9986	0,03	0,99744	0,05
	383,85	1,0074	0,15	1,00373	0,07
⁶⁰ Co	1173,20	0,9976	0,05	0,99888	0,02
	1332,50	0,9975	0,05	0,99880	0,02
¹⁶⁶ Ho	80,57	0,9992	0,02	0,99920	0,02
	674,24	0,9966	0,07	0,9959	0,08
	705,21	0,9987	0,03	0,9982	0,04
	785,78	0,9997	0,01	0,999	0,02
	1379,45	0,9991	0,01	0,9991	0,01
	1581,85	1,0104	0,21	0,9994	0,01
	1662,42	1,0000	0,00	1,0004	0,01
	1749,84	0,9994	0,01	0,9994	0,01
	1830,41	1,0013	0,01	1,001	0,02

Fonte autor da tese

5.2.3 Probabilidade de emissão por decaimento da transição gama de 80,57 keV e 1379,45 keV do ^{166}Ho

A partir da padronização no sistema de coincidências e das medidas da radiação gama de 1379,45 keV no espectrômetro HPGe, foi determinada a probabilidade de emissão gama por decaimento para esta energia. Na Tabela 20 são apresentados os valores da atividade (absoluta) determinada no sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$, o valor da área obtida com o espectrômetro HPGe e a eficiência com as respectivas incertezas.

Nesta tabela, a medida 1 (sem absorvedor) corresponde à solução padronizada no sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$ selecionando-se o fotopico de absorção total de 80,57 keV. As medidas 2 e 3 correspondem à solução padronizada no sistema de coincidências selecionando-se o fotopico de absorção total de 1379,45 keV, sendo que na medida 2 não foi usado absorvedor e na 3 foi utilizado o absorvedor de alumínio de 7 mm de espessura. Nas medidas 1 e 2 a eficiência utilizada foi determinada por meio da curva apresentada na Figura 42 e na medida 3 foi utilizada a Figura 51.

Tabela 20 - Probabilidade de emissão gama por decaimento, (I_γ), do fóton de 1379,45 keV determinado para as três medidas em ampolas com respectivos valores de atividade determinado no sistema $4\pi\beta-\gamma$.

Medidas	I_γ %	Atividade $4\pi\beta-\gamma$ kBq g ⁻¹	At HPGe 10 ³ cps g ⁻¹	Eficiência γ x 10 ⁻⁴	σ_{Geom} %	σ_{efic} %	σ_{area} %	σ_{dec} %	σ_{tmorto} %	σ_{massa} %	$\sigma_{4\pi\beta-\gamma}$ %
1 sem abs	(0,929 ± 0,012)	(344,33 ± 0,93)	(319,8 ± 4,2)	(3,593 ± 0,031)	0,82	0,87	0,35	0,05	0,29	0,1	0,27
2 sem abs	(0,936 ± 0,015)	(243,9 ± 1,5)	(228,3 ± 3,5)	(3,593 ± 0,031)	0,82	0,87	0,69	0,05	0,29	0,1	0,60
3 com abs	(0,943 ± 0,017)	(243,9 ± 1,5)	(229,9 ± 3,6)	(3,228 ± 0,039)	0,82	1,21	0,47	0,04	0,29	0,1	0,60
Média	(0,936 ± 0,004)										

Fonte: autor da tese.

Incerteza no valor de I_γ médio foi considerado o desvio padrão da média

Onde:

σ_{Geom} : incerteza espessura do vidro da ampola e altura do líquido

σ_{efic} : incerteza na eficiência de pico

σ_{area} : incerteza na área do fotopico

σ_{dec} : incerteza na correção de decaimento

σ_{tmorto} : incerteza na correção de tempo morto

σ_{massa} : incerteza na massa da solução na ampola

$\sigma_{4\pi\beta-\gamma}$: incerteza na atividade absoluta

σ_{efsoma} incerteza no efeito soma considerada foi de 0,02%

Como pode ser visto, as intensidades (I_γ) do fóton de 1379,45 keV apresentados na Tabela 20 são concordantes dentro da incerteza experimental, o que demonstra que no caso de medidas com a amostra acondicionada em ampola, na região de energia acima de 1000 keV a influência do contínuo beta não é significativa, como pode ser observado nas figuras 53 e 54 que apresentam dois espectros do ^{166}Ho medidos com a amostra sem absorvedor e com absorvedor de alumínio de 7 mm de espessura.

Figura 53 - Espectro gama de ^{166}Ho , com amostra em ampola sem absorvedor

Fonte autor da tese

Figura 54 Espectro gama de ^{166}Ho , com amostra em ampola com absorvedor de alumínio com espessura de 7 mm

Fonte autor da tese

Para uma melhor análise da região de baixa energia, (entre 80 keV e 800 keV), optou-se por utilizar um absorvedor de alumínio de 7 mm como sugerido por (ARDISSON, 1992), para absorver as radiações beta de altas energias emitidas pelo ^{166}Ho .

Nas figuras 55 e 56 são apresentados dois espectros que foram medidos utilizando-se fontes em Collodion, com e sem absorvedor, para mostrar o efeito. Comparando-se estes espectros, nota-se que o uso do absorvedor reduziu a influência dos raios betas emitidos, destacando a presença dos demais picos.

Figura 55 Espectro gama de ^{166}Ho de amostra em *Collodion* sem absorvedor

Fonte autor da tese

Figura 56 Espectro gama de ^{166}Ho de amostra em *Collodion* com absorvedor

Fonte autor da tese

Na Tabela 21 são apresentados os valores de eficiência obtidos do ajuste polinomial para a energia gama do ^{166}Ho menores que 1408 keV. Os valores das eficiências para os fótons com energia maior que 1408 keV foram utilizados os valores obtidos pela simulação de Monte Carlo, uma vez que não havia nenhum ponto experimental nesta região, no entanto pode-se verificar pela comparação entre as eficiências experimentais e as eficiências calculadas por MC apresentadas na tabela 17, que estes valores são confiáveis, tendo uma variação de aproximadamente 1 % dentro da incerteza experimental.

Tabela 21 - Valores de eficiência gama utilizados para determinação das intensidades gama relativas

Energia γ (keV)	Eficiência exp	σ_{total} %
80,57	0,0023003	1,98
674,24	0,0005979	1,04
705,21	0,0005743	1,05
785,78	0,0005217	1,07
1379,45	0,0003228	1,21
1581,85	0,0002988*	1,29
1662,42	0,00028235*	1,33
1749,84	0,0002687*	1,36
1830,41	0,00025715*	1,4

* Eficiência calculada por Monte Carlo

Fonte: Autor da tese.

Na Tabela 22 são apresentados os valores obtidos para as medidas no espectrômetro HPGe. A probabilidade de emissão gama por decaimento da energia gama de 80,57 keV só foi possível ser determinada por meio da medida no espectrômetro HPGe com absorvedores de alumínio de 7,0 mm para atenuar os raios betas de alta energia emitidos pelo radionuclídeo. Nesta tabela as intensidades gama absolutas para as demais energias foram obtidas a partir da atividade calculada pela medida da radiação gama de 1379,45 keV usando a intensidade gama de 0,936 (4) % experimental, obtida neste trabalho. Esta atividade foi utilizada para determinação das intensidades gama das outras energias do ^{166}Ho . Estes valores foram comparados com os dados recomendados por (BÉ et al; 2011).

Tabela 22 - Probabilidades de emissão gama por decaimento dos fótons emitidos pelo ^{166}Ho comparadas com os dados recomendados por (BÉ et al; 2011).

Energia γ (keV)	Intensidade γ Absoluta*	Intensidade γ BÉ et al (2011)*	Desvio Relativo %
80,57	0,0657 (18)	0,06550 (8)	-0,26
674,24	0,000210 (5)	0,000198 (17)	-6,01
785,78	0,0001295 (3)	0,000120 (3)	-8,00
1379,45	0,00936 (4)	0,00933 (35)	-0,32
1581,85	0,00179 (3)	0,00186 (4)	3,50
1662,42	0,00117 (2)	0,001180 (5)	0,85
1749,84	0,000262 (5)	0,00027 (5)	3,54
1830,41	0,000082 (2)	0,000081(2)	-0,72

*Os números entre parênteses correspondem a incerteza nos últimos dígitos.

Fonte: autor da tese

Houve uma boa concordância para as energias de 80,57 keV, 1379,45 keV, 1662,42 keV e 1830,41 keV, como mostra o desvio relativo.

Na Tabela 23 são apresentadas as intensidades gama relativas considerando-se 1 a intensidade da radiação gama de 1379,45 keV obtidas neste trabalho, comparadas com os dados da literatura. Os números entre parênteses correspondem a incerteza nos últimos dígitos.

Tabela 23 - Comparação das intensidades gama relativas obtidas neste trabalho com os dados da literatura*.

Os números entre parênteses correspondem a incerteza nos últimos dígitos.

E_{γ} keV	Burson	Reich	Venkata	Allab	Chand	Ardisson	<i>Evaluation</i>	Este trabalho
80	6,67 (43)		7,04 (30)	6,72 (7)	7,22 (8)	6,56 (40)	7,02 (14)	7,02 (19)
184		0,0022 (5)		0,0013 (3)	0,0023 (1)	0,0010 (1)	0,0016 (7)	
521				0,00032 (11)	0,0005 (2)	0,00038 (1)	0,00038 (2)	
674	0,032 (2)	0,022 (2)	0,034 (2)	0,0176 (9)	0,023 (1)	0,0201 (4)	0,0212 (18)	0,0224 (5)
705	0,020 (3)	0,016 (2)	0,023 (1)	0,0137 (7)	0,0170 (1)	0,0144 (3)	0,0156 (13)	
785	0,016 (3)	0,014 (2)	0,012 (5)	0,0125 (7)	0,0140 (10)	0,0128 (3)	0,01288 (27)	0,01385 (4)
1263				0,0015 (2)	0,0017 (1)	0,0016 (3)	0,00166 (9)	
1379	1,	1	1	1	1	1	1	1
1447				0,00105(10)	0,0012 (1)	0,0014 (5)	0,00113 (1)	
1528				0,0002		0,00010 (1)	0,00015 (5)	
1581	0,206 (10)	0,195 (10)	0,215 (10)	0,197 (7)	0,199 (5)	0,197 (5)	0,1994 (28)	0,192 (3)
1662	0,129 (7)	0,125 (6)	0,099 (5)	0,130 (5)	0,127 (4)	0,130 (2)	0,126 (5)	0,125 (2)
1731						0,00005 (2)	0,00005 (2)	
1749	0,033 (1)	0,027 (2)	0,030 (17)	0,028 (2)	0,028 (1)	0,0285 (6)	0,0292 (9)	0,0280 (5)
1812						0,00006 (2)	0,00006 (2)	
1830	0,0100 (8)	0,0086 (11)	0,0081 (5)	0,0089 (5)	0,0085 (2)	0,0089 (3)	0,0087 (2)	0,0087 (2)

*Dados obtidos da referência: SCHONFELD e DERSCH, 2011

Fonte: autor da tese.

Nas Figuras 57 a 63 são apresentadas as intensidades gama relativas de cada energia gama determinadas neste trabalho, comparados com os demais autores da literatura de forma gráfica, para melhor visualização da comparação.

Figura 57 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 80,57 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 58 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 674,24 keV.

trabalho para a energia gama de 674,24 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 59 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 785,78 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 60 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 1581,85 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 61 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 1662,42 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 62 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 1749,84 keV.

Fonte: autor da tese

Figura 63 - Gráfico comparativo dos valores da literatura e o valor obtido neste trabalho para a energia gama de 1830,41 keV.

Fonte: autor da tese

Como pode ser visto os resultados obtidos neste trabalho para as intensidades gama relativas das radiações gama de 80,57 keV, 674,24 keV, 785,78 keV, 1581,85 keV, 1662,42 keV, 1749,84 keV e 1830,41 keV comparadas com os dados da literatura estão em bom acordo dentro da incerteza experimental.

6 CONCLUSÃO E ETAPAS FUTURAS

Como proposto neste trabalho, foi realizada a padronização do ^{64}Cu radionuclídeo que desintegra por meio de três vias distintas utilizando-se a técnica de extrapolação linear da eficiência aplicando-se um fator de correção para a eficiência beta denominado Fator Kawada. A partir da combinação dos resultados da padronização deste radionuclídeo de modo absoluto e da medida em espectrômetro gama HPGe previamente calibrado com ampolas padrão de ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs e ^{241}Am foi possível a determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento da radiação gama de 1345,7 keV por ele emitida. O valor obtido foi de 0,472 (10) % que apresentou um bom acordo com os dados da literatura.

Neste trabalho foi possível também fazer a padronização deste radionuclídeo com sistema SCS variando-se as eficiências ε_{EC2} e $\varepsilon_{\beta+}$ pelo método de discriminação eletrônica, o que permitiu a aplicação do método bi-paramétrico para determinação da atividade, cujo valor foi concordante dentro da incerteza experimental com o valor obtido pelo sistema TAC.

A padronização do ^{166}Ho em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ com contador proporcional associado a um sistema de aquisição de dados por software, SCS (*Software Coincidence System*), como proposto, foi bem sucedida possibilitando a determinação da probabilidade de emissão gama por decaimento dos fótons gamas de 80,57 keV e de 1379,45 keV pela combinação da medida em sistema primário com as medidas no espectrômetro gama HPGe padronizado com ampolas padrão numa geometria distinta da anteriormente citada em função do uso de um absorvedor de alumínio para atenuação das partículas beta de alta energia emitidas pelo ^{166}Ho .

Por meio destas medidas foi possível também a determinação das intensidades relativas gama de outros fótons menos intensos emitidos por este radionuclídeo. Os resultados obtidos foram concordantes com a literatura dentro da incerteza experimental.

Aplicação do programa Esquema desenvolvido pelo LMN utilizando a técnica de Monte Carlo para a simulação das curvas de extrapolação apresentou boa concordância em comparação com as curvas de extrapolação determinadas experimentalmente para os dois radionuclídeos selecionados.

Concluimos, portanto, que o trabalho teve êxito e os nossos dados poderão contribuir com os dados da literatura para a melhoria dos esquemas de decaimento dos radionuclídeos selecionados ^{64}Cu e ^{166}Ho , que são de grande interesse em medicina nuclear.

As próximas etapas serão a realização de estudos de outros radionuclídeos de interesse na Medicina Nuclear, para determinação da atividade absoluta e das intensidades gama, pelo método de coincidências $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ e $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma$, para aprimoramento da análise de medidas feitas com o sistema SCS desenvolvido no LMN.

O trabalho referente às medidas do ^{64}Cu foi publicado no periódico *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 134, p. 321-315, 2018.

O trabalho do ^{166}Ho foi aceito para apresentação no 22nd International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2019.

7 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALLIOT, C.; MICHEL, N.; BONRAISIN, A.C.; BOSSÉ, V.; LAIZÉ, J.; BOURDEAUX, C.; MOKILI, B.M.; HADDAD, F. One step purification process for no-carrier added ^{64}Cu produced using enriched nickel target. *Radiochimica Acta*, vol. 99, p. 627-630, 2011.

AMIOT, M. N.; BÉ, M.-M.; BRANGER, T.; CASSETTE, P.; LÉPY, M.C.; MÉNESGUEN, Y.; DA SILVA, I. Standardization of ^{64}Cu using an improved decay scheme. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. A 684, p. 97-104, 2012.

ANDERSON, C.J.; FERDANI, R. Copper-64 radiopharmaceuticals for PET imaging of cancer: advances in preclinical and clinical research. *Cancer Biotherapy and Radiopharmaceuticals*, vol. 24, p. 379-393, 2009.

ARDISSON, C.; BARCI, V.; DALMASSO, J.; HACHEM, A.; ARDISSON, G. Intrinsic and Collective ^{166}Er Levels Fed in the Decays of $^{166}\text{Ho}^m$ ($T_{1/2} = 1200\text{y}$) and $^{166}\text{Ho}^g$ ($T_{1/2} = 26.8\text{h}$). *Il Nuovo Cimento*, vol. 105 A, N.2, 1992.

ASABELLA, A.N.; CASCINI, G.L.; ALTINI, C.; PAPARELLA, D.; NOTARISTEFANO, A.; RUBINI, G. The copper radioisotopes: a systematic review with special interest to ^{64}Cu . *BioMed Research International*, p. 1 - 9, 2014. Disponível em: <http://dx.doi.org/10.1155/2014/786463>. Acesso em: Julho 2018.

AVILA-RODRIGUEZ, M.A.; NYE, J.A.; NICKLES, R.J. Simultaneous production of high specific activity ^{64}Cu and ^{61}Co with 11.4 MeV protons on enriched ^{64}Ni nuclei. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 65, p.1115-1120, 2007.

BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Coincidence system for standardization of radionuclides using a 4π plastic scintillator detector. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 58, 239-244, 2003.

BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F.; BRANCACCIO, F. Standardization of ^{18}F by means of $4\pi(\text{PS})\beta\text{-}\gamma$ plastic scintillator coincidence system. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 55, No, 3, p. 1767-1773, 2008.

BAERG, A. P. Measurement of radioactivity disintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*. vol. 2, No. 1, p. 23-32, 1966.

BAERG, A. P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, vol. 3, No. 4, p. 105-108, 1967.

BAERG, A. P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 112, p. 143-150, 1973.

BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; MOUGEOT, X. ; CHECHEV, V.P. ; KUZMENKO, N.K. ; KONDEV, F.G. ; LUCA, A. ; GALÁN, M. ; NICKOLS, A.L. ; ARINC, A. ; PEARCE, A. ; HUANG X. ; WANG, B. 2011. Monographie BIPM-5, *Table of Radionuclides*, Vol. 6 – A = 22 to 242. Disponível em (http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm). Acesso em Julho 2016.

BÉ, M.-M. ; CASSETTE, P. ; LÉPY, M.C. ; AMIOT, M.N. ; KOSSERT, K. ; NAHLE, O.J. ; OTT, O. ; WANKE, C. ; DRYAK, P. ; RATEL, G. ; SAHAGIA, M. ; LUCA, A. ; ANTOHE, A. ; JOHANSSON, L. ; KEIGHTLEY J. ; PEARCE, A. Standardization, decay data measurements and evaluation of ^{64}Cu . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, p. 1894-1899, 2012.

BERGERON, D.E.; CESSNA, J.T.; FIZGERALD, R.; PIBIDA, L.; ZIMMERMAN, B.E. Standardization of ^{64}Cu activity. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 139, p. 266-273, 2018.

BLOWER, P.J.; LEWIS, J.S.; ZWEIT, J. Copper radionuclides and radiopharmaceuticals in nuclear medicine. *Nuclear Medicine and Biology*, vol.,23, p.957-980, 1996.

BRANCACCIO, F. *Metodologia de aquisição de dados e análise por software, para sistemas de coincidências $4\pi\beta\gamma$ e sua aplicação na padronização de radionuclídeos, com ênfase em transições metaestáveis*. 2013. 126 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

BREITZ, H.B.; WENDT, R.E.; STABIN, M.S.; SHEN, S.; ERWIN, W.D.; RAJENDRAN, J.G.; EARY, J. F.; DURACK, L.; DELPASSAND, E.; MARTIN, W.; MEREDITH, R. F.

^{166}Ho -DOTMP radiation absorbed dose estimation for skeletal targeted radiotherapy. *The Journal of Nuclear Medicine*, vol. 47, No.3, p. 534-542, 2006.

BRITO, A.B.; KOSKINAS, M.F.; LITVAK, F.; TOLEDO, F.; DIAS, M.S. Standardization of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ by means of a Software Coincidence System. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 20, p. 1362-1366, 2010.

CAMPION, P. J. The standardization of radioisotopes by beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 4, p: 232-248, 1959.

CARDOSO, V. *Estudo das covariâncias envolvidas no método k0 de análise por ativação neutrônica*. 2011. 131 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

CHAND, B.; GOSWAMY, J.; MEHTA, D., SINGH, N.; TREHAN, P.N. X-ray and gamma-ray intensity measurements in ^{131}I , ^{166}Ho , ^{198}Au and ^{199}Au decays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, vol. A 284, p. 393-398, 1989.

CHRISTMAS, P.; JUDGE, S.M.; RYVES, T.B.; SMITH, D.; WINKLER, G. The decay of ^{64}Cu . *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 215, p.397-408, 1983.

COLLINS, S.; KEIGHTLEY, J.; GILLIGAN, C.; GASPARRO, J.; PEARCE, A. Determination of the gamma emission intensities of ^{111}Ag , *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, 107-111, 2014.

COSTA, R.F. *Desenvolvimento de métodos e preparação de microesferas de polímeros e resinas marcadas com Holmio-166*. 2008. 82 p. Dissertação (Mestrado), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

COURSEY, B.M.; CALHOUN, J.M.; CESSNA, J.; GOLAS, D.B.; SHIMA, F.J.; UNTERWEGER, M.P. Liquid-scintillation counting techniques for the standardization of radionuclides used in therapy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 339, p. 26-30, 1994.

COX, D. R., ISHAM, V. A Bivariate point process connected with electronic counters. *Proceedings of the Royal Society of London A*, vol. 356, p.149-160, 1977.

DEBERTIN, K.; HELMER, R.G. *Gamma-Ray and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, first ed., Amsterdam, Elsevier, 1988.

DIAS, M. S.; FONSECA, K.A. ; KOSKINAS, M.F.; MOREIRA, D.S. Covariance methodology applied to uncertainties in I-126 disintegration rate measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 369, p. 437-440, 1996.

DIAS, M. S. ; FONSECA, K. A.; KOSKINAS, M. F.; ATTIE, M.R.P. Absolute disintegration rate measurements of GA-67. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 49, n. 9-11, p. 1173-1177, 1998.

DIAS, M.S., *LINFIT: A code for linear least square fit with covariance analysis*. Internal Report, IPEN-CNEN/SP, 1999.

DIAS, M. S., *ALPINO 1: User's manual*. Internal Report, IPEN-CNEN/SP, 2001.

DIAS, M.S., *CONTAC 15: A code for activity calculation based on TAC system*. Internal Report, IPEN-CNEN/SP, 2001.

DIAS, M. S.; TAKEDA, M. N.; KOSKINAS, M. F. Cascade summing corrections for REGe spectrometers by the Monte Carlo method. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 56, p. 105-109, 2002.

DIAS, M.S.; MOREIRA, D.S., *LOGFIT: User's manual. Internal Report*, IPEN-CNEN/SP, 2005.

DIAS, M. S. ; TAKEDA, M. N ; KOSKINAS, M. F . Application of Monte Carlo simulation to the prediction of extrapolation curves in the coincidence technique. *Applied Radiation and Isotopes*, 64, 1186-1192, 2006.

DIAS, M. S.; PIUVEZAM FILHO, H.; BACCARELLI, A. M.; TAKEDA, M. N.; KOSKINAS, M. F. Monte Carlo simulation of β - γ coincidence system using plastic scintillators in 4π geometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 580, p. 380-383, 2007.

DIAS, M. S.; PIUVEZAM FILHO, H.; KOSKINAS, M. F.; Optimization of a coincidence system using plastic scintillators in 4π geometry. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66,p. 905-908, 2008.

DIAS, M.S., *SCTAC 6: A code for activity calculation based on Software Coincidence Counting measurements. Internal Report*, IPEN-CNEN/SP, 2010.

DIAS, M. S.; TAKEDA, M. N.; TOLEDO, F.; BRANCACCIO, F ; TONGU, M. L. O.; KOSKINAS, M. F. Improvements in the Monte Carlo code for simulating $4\pi\beta(\text{PC})$ - γ coincidence system measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. Section A, Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 698, p. 177-184, 2013.

DIAS, M. S. ; BRANCACCIO, F. ; TOLEDO, F. ; KOSKINAS, M.F. Disintegration rate, gamma-ray emission probabilities and metastable half-life measurements of ^{67}Ga . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, p. 126-131, 2014.

DIAS, M.S., *NUC8, Cálculo de efeito soma pela técnica de Monte Carlo*, Relatório interno, LMN (IPEN), 2017.

EVANS, R. D. *The Atomic Nucleus*. McGraw-Hill, Inc. New York. 1955.

FERREIRA, C. R P P ; KOSKINAS, M. F ; DIAS, M. S. Standardization of Ca-45 Radioactive Solution by Tracing Method. *Brazilian Journal of Physics*, São Paulo, vol. 34, No. 3, p. 939-941, 2004.

FONSECA, K. A. *Desenvolvimento de métodos de medida de atividade empregando sistemas de coincidência para radionuclídeos que desintegram pela dupla emissão β^-*

β^+ /captura eletrônica-aplicação na padronização do ^{192}Ir , ^{152}Eu e ^{186}Re . 2002. 147p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

FONSECA, K. A.; KOSKINAS, M. F. ; DIAS, M. S. Measurement of gamma-ray probability per decay of Re-186. In: 2008 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE RECORD, October, 2008, Dresden, Germany. *Proceedings...*

GERMANIUM DETECTORS. *User's manual*, Camberra Industries, copyright 1993.

HAVELKA, M.; SOCHOROVÁ, J. Standardization of ^{64}Cu using software coincidence counting system. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, 203-206, 2014.

HOUTERMANS, H.; MIGUEL, M. $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting for the calibration of nuclides with complex decay schemes. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 13, p. 137-142, 1962.

JUDGE, S.M.; ARNOLD, D.; CHAUVENET, B.; COLLÉ, R.; DE FELICE, P.; GARCÍA-TORANO, E.; WATJEN, U. 100 years of radionuclide metrology. *Applied Radiation and Isotope*, vol. 87, p. 27-31, 2014.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY *Update of X Ray and Gamma Ray Decay Data Standards for Detector Calibration and Other Applications*. — Vienna, STI/PUB/1287, 2007.

JUNIOR, J.A.S.; AMARAL, R.S.; SILVA, C.M.; MENEZES, R.S.C.; BEZERRA, J.D. Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo. *Scientia Plena*, vol.5, No.4, p. 1-15, 2009.

KAWADA, Y. Decay data measurements of ^{64}Cu by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence technique and photon spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 37, No. 1, p.7-12, 1986.

KNOLL, G. F., *Radiation Detection and Measurement*, 4th ed., John Wiley & Sons, New York, 2010.

KOSKINAS, M. F., *Desenvolvimento de um Sistema de Coincidência para a Medida Absoluta da Atividade de Radionuclídeos Empregando Detectores de Barreira de Superfície*. 1988.140 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP.

KOSKINAS, M. F. ; FONSECA, K. A. ; DIAS, M. S. Disintegration rate measurements of a Eu-152 solution. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 56, p. 441-445, 2002.

KOSKINAS, M. F. ; SILVA, E. A ; YAMAZAKI, I. M. ; DIAS, M. S. Standardization of Am-241 solution. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 64, 1238-1241, 2006.

KOSKINAS, M. F.; PIRES, C. A. ; YAMAZAKI, I. M. ; SILVA, E. A ; DIAS, M. S. . Standardization of Fe-55 by tracing method, *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, p. 733-736, 2008a.

KOSKINAS, M. F.; SILVA, E. A.; YAMAZAKI, I. M.; DIAS, M. S. Disintegration Rate Measurement of ^{182}Ta . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, p. 934-936, 2008b.

KOSKINAS, M.F. ; BRITO, A.B. ; TAKEDA, M.N., DIAS, M.S. Application of Monte Carlo Simulation to ^{111}In Standardization by Means of a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ Coincidence System. In: 2010 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE RECORD, October 30- November 6, 2010, Knoxville, Tennessee, USA. *Proceedings...*

KOSKINAS, M.F. ; GISHITOMI, K.C. ; BRITO, A.B. ; YAMAZAKI, I. M. ; DIAS, M.S. Disintegration rate and gamma ray emission probability per decay measurement of ^{123}I . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, 2091-2096, 2012a.

KOSKINAS, M. F.; LACERDA, F. W.; YAMAZAKI, I. M.; TOLEDO, F.; TAKEDA M.N.; DIAS, M. S. Standardization of ^{68}Ga by means of a software coincidence system. In: 2012 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE RECORD, October 29- November 3, 2012b, Anaheim, California, USA. *Proceedings...*

KOSKINAS, M. F.; LACERDA, F. W. ; MATOS, I. T.; NASCIMENTO, T. S.; YAMAZAKI, I. M.; TAKEDA, M. N.; DIAS, M. S. Determination of gamma-ray emission probabilities per decay of ^{68}Ga . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, p. 118-121, 2014.

KOSKINAS, M. F.; ALMEIDA, J.S, MOREIRA, D.S., DIAS, M. S Gamma-ray impurities of ^{111}In , ^{201}Tl , ^{177}Lu and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ measured by means of high resolution gamma spectrometer in 2017 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2017 Belo Horizonte, MG, Brazil, October 22-27, 2017, *Proceedings...*

KRANE, K.S. *Introductory Nuclear Physics*. John Wiley & Sons, 1988.

LAVRAS W. O.; KOSKINAS, M.F.; DIAS, M.S.; FONSECA, K.A. Primary Standardization of Cr-51 Radioactive Solution. In: V REGIONAL CONGRESS ON RADIATION PROTECTION AND SAFETY -Regional IRPA Congress, Recife, PE, Brazil. April 29 to May 04, 2001. *Anais...*

- LEO, W.R., *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1987.
- LIBERAL, F.D.C.G. *Avaliação e Caracterização por Métodos Computacionais de Diferentes Radioisótopos no Contexto da Terapia Paliativa de Metástases*. 2013. Dissertação (Mestrado), Universidade do Porto, Portugal.
- LOVELAND, W.D.; MORRISSEY, D.J.; SEABORG, G.T. *Modern Nuclear Chemistry*, John Wiley and Sons, 2006.
- LUCA, A.; SAHAGIA, M.; ANTOHE, A. Measurements of ^{64}Cu and ^{68}Ga half-lives and γ -ray emission intensities. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 70, No. 9, p.1876- 1880, 2012.
- LUCA, A. Decay Data Evaluation Project: Evaluation of ^{52}Fe nuclear decay data. *Applied Radiation and Isotopes*. vol. 109, p.169-171, 2016.
- MANRIQUE-ARIAS, J.C.; AVILA-RODRIGUEZ, M.A. A simple and efficient method of nickel electrodeposition for the cyclotron production of ^{64}Cu . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 89, p. 37-41, 2014.
- MARMIER, P., SHELDON, E. *Physics of Nuclei and Particles*. Vol. 1. Academic Press, 1969.
- MATOS, I. T. ; KOSKINAS, M. F.; NASCIMENTO, T. S. ; YAMAZAKI, I. M. ; DIAS, M. S. Standardization and determination of the total internal conversion coefficient of ^{111}In . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 87, p. 192-194, 2014.
- MOREIRA, D. S.; KOSKINAS, M. F. ; YAMAZAKI, I. M. ; DIAS, M. S. . Determination of ^{51}Cr and ^{241}Am X-ray and gamma-ray emission probabilities per decay. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, p. 596-599, 2010.
- 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}Tl* . 1969. 87p. Tese (Doutoramento), Universidade de Campinas, UNICAMP, SP.
- NASCIMENTO, T.S. *Padronização do Y-90 pelo método CIEMAT/NIST em sistema de cintilação líquida e pelo método do traçador em sistema de coincidências $4\pi\beta\gamma$* . 2014. 72p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN- CNEN/SP, São Paulo.
- NATIONAL INSTRUMENTS., *Curso de software* - versão 6.0,código do manual 322682A-01, 2001.

NIJSEN, F. ; ROOK, D. ; BRANDT, C. ; MEIJER, R. ; DULLENS, H. ; ZONNENBERG, B. ; KLERK, J. ; VAN RIJK, P. ; HENNINK, W. ; VAN HET SCHIP, F. Targeting of liver tumour in rats by selective delivery of holmium-166 loaded microspheres : a distribution study. *European Journal of Nuclear Medicine*, vol. 28, p. 743-749, 2001.

OHYA, T.; NAGATSU, K.; SUZUKI, H.; FUKADA, M.; MINEGISHI, K.; HANYU, M.; FUKUMURA, T.; ZHANG, M.R. Efficient preparation of high-quality ^{64}Cu for routine use. *Nuclear Medicine and Biology*, vol. 43, p.685-691, 2016.

O'KELLEY, G.D. *Detection and Measurement of Nuclear Radiation*, The National Academies Press, Washington DC, 1962. Disponível em: <https://doi.org/10.17226/18670>. Acesso: Março 2018.

OKUNO, E., YOSHIMURA, E.M. *Física das Radiações*. Oficina de Textos, São Paulo.2010.

OLIVEIRA, R.; SANTOS, D.; FERREIRA, D.; COELHO, P.; VEIGA, F. Preparações radiofarmacêuticas e suas aplicações. *Revista Brasileira de Ciências Farmacêuticas*, vol. 42, No.2, p. 151-165, 2006.

ORNL, *Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP6*, RSICC Computer Code-Colletion, Oak Ridge National Laboratory, 2006.

PEREIRA, Maria C.C. *Desenvolvimento e caracterização do cristal cintilador de CsI(Tl) utilizado como detector de radiação*. 1997, 99p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

PIBIDA, L.; ZIMMERMAN, B.; BERGERON, D.E.; FITZGERALD, J.T.; CESSA, L. KING. Determination of photon emission probability for the main gamma ray and half life measurements of ^{64}Cu ., *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 129, p.6-12, 2017.

POMMÉ S. Methods for primary standardization of activity. *Metrologia*, vol. 44, p. S17 - S26, 2007.

QAIM, S. M.; BISINGER,T.; HILGERS, K.; NAYAK, D.; COENEN, H. H. Positron emission intensities in the decay of ^{64}Cu , ^{76}Br and ^{124}I . *Radiochimica Acta*, vol. 95, No. 2, p.67–73, 2007.

QAIM, S. M. The present and future of medical radionuclide production. *Radiochimica Acta*, vol. 100, p. 635–651, 2012.

RANJBAR, H.; MARAGHEH, M.; SAMANI, A.B; BEIKI, D. Dosimetric evaluation of ^{153}Sm -EDTMP, ^{177}Lu -EDTMP and ^{166}Ho -EDTMP for systemic radiation therapy:

influence of type and energy of radiation and half-life of radionuclides. *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 108, p.60-64, 2015.

REBELES, R.A.; WINKEL, P.; HERMANNE, A.; TÁRKÁNYI, F. New measurement and evaluation of the excitation function of $^{64}\text{Ni}(p,n)$ reaction for the production of ^{64}Cu . *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research B*, vol. 267, p.457-461, 2009.

REICH, C.W.; CLINE, J.E. Gamma-ray studies of the γ -vibrational band of ^{166}Er . *Nuclear Physics A*, vol. 159, p.181-201, 1970.

SAHA, G.B. *Fundamentals of nuclear pharmacy*. p. 34-170. Springer, 1998.

SAHAGIA, M.; LUCA, A.; ANTOHE, A.; IVAN, C. Standardization of ^{64}Cu and ^{68}Ga by the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method and calibration of the ionization chamber. *Applied Radiation and Isotopes*. vol. 70, 2025 -2030, 2012.

SCHONFELD, E., DERSCH, R. Comments on evaluation of decay data. LNHNB – Laboratoire National Henri Becquerel Recommendent Data, *Table de Radionucléides*. 2011. Disponível em:
http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ho-166_com.pdf. Acesso em Julho 2016.

SEKINE, T.; BABA, H. Cross sections of the $(n,2n)$ reaction of ^{59}Co , ^{58}Ni , ^{70}Ge , ^{90}Zr and ^{203}Tl with fission neutrons. *The Journal of Inorganic Nuclear Chemistry*, vol. 43, p.1107-1113, 1981.

SMITH, D.L. Improved corrections formulae for coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*, vol. 152, p.505-519, 1978.

SMITH, D.L., Some developments in the Cox-Isham theory of coincidence corrections, including the extension to the computer-discrimination method, *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 38, No.10, p.813-822, 1987.

SMITH, D. L. Probability, Statistics, and Data Uncertainties in Nuclear Science and Technology. Series: Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology. *American Nuclear Society*, 1991.

TAKEDA, M. N.; DIAS, M.S.; KOSKINAS, M. F., Application of Monte Carlo simulation to ^{134}Cs standardization by means of $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence system. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 52, No. 5, p. 1716-1720, 2005.

TAKEDA, M.N. *Aplicação do Método de Monte Carlo no estudo da atividade obtida em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ para radionuclídeos com esquema de desintegração complexos*. 2006. 120p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

TEHRANI, M.V.; ZOLGHADRI, S.; YOUSEFNIA, H.; AFARIDEH, H. Estimation of human absorbed dose for ^{166}Ho -PAM: comparison with ^{166}Ho -DOTMP and ^{166}Ho -TTHMP. *The British Journal of Radiology*, vol. 89, p. 1066, 2016.

TOLEDO, F.; BRANCACCIO, F.; LAPOLLI, A.; DIAS, M. S. Design of electronic system with simultaneous registering of pulse amplitude and event time applied to $4\pi\beta$ - γ coincidence method. In: 2008 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM AND MEDICAL IMAGING CONFERENCE RECORD, October 2008, Dresden, Germany. *Proceedings...*

TOLEDO, F. *Desenvolvimento de um sistema eletrônico com registro simultâneo de amplitude e instante de ocorrências dos pulsos, aplicado ao método de coincidências $4\pi\beta$ - γ* . 2009. 92p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo.

VOLKERT, W.A.; GOECKELER, W.F.; EHRHARDT, G.J.; KETRING, A.R. Therapeutic radionuclides: production and decay property considerations. *The Journal of Nuclear Medicine*, vol. 32, p. 174-185, 1991.

WANKE, C.; KOSSET, K.; NAHLE, O.J.; Ott, O. Activity standardization and decay data of ^{64}Cu . *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 68, p.1297-1302, 2010.

WILLIAMS, A.; CAMPION, P.J. Measurement of the γ sensitivity of $4\pi\beta$ counter. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*. vol. 14, p. 533-540, 1963.

WILLIAMS, A.; HUGHES, F.H.; CAMPION, P.J. Systematic errors in the $4\pi\beta$ - γ coincidence measurements. *Metrologia*, vol. 4, No. 4: p. 178-180, 1968.

WILLIAMS, A.; CAMPION, P.J. On the relative time distribution of pulses in the $4\pi\beta$ - γ coincidence technique. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 16, p.555-560, 1965.

WILLIAMS, H.A.; ROBINSON, S.; JULYAN, P.; ZWEIT, J.; HASTINGS, D. A comparison of PET imaging characteristics of various copper radioisotopes. *European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging*, vol.32, No. 12, p. 1473-1480, 2005.

YAMAZAKI, I.M.; KOSKINAS, M. F.; MOREIRA, D.S.; TAKEDA, M.N.; DIAS, M. S. . Disintegration rate and gamma ray emission probability per decay measurement of ^{64}Cu . *Applied Radiation and Isotopes*, 134, p. 321-315, 2018.

ZEVALLOS-CHÁVEZ, J. Y. *Função resposta de detectores semicondutores, Ge e Si(Li)*. Tese de Doutorado apresentado à Universidade de São Paulo, 110p. 2003.

ZIMMERMAN, B.E. Radionuclide metrology in the life sciences: Recent advances and future trends. *Applied Radiation and Isotopes*, 64, 1351–1359, 2006.

ZIMMERMAN, B.E.; BERGERON, D.E.; EDGERTON, J.P. Assessing the absolute quantitative accuracy of positron emission tomography for ^{64}Cu using traceable calibrated phantoms. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 134, p. 68--73, 2018.

ZOLGHADRI, S.; YOUSEFNIA, H.; JALILIAN, A.R.; SHIRI-YEKTA, Z.; MARAGHEH, M.G. Preliminary dosimetry of ^{166}Ho -propylene di-amino tetra (methylenephosphonicacid) for human based on biodistribution data in rats. *Journal Cancer Research and Therapeutics*, vol. 11, No.4, p.862-867, 2015.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

**O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada
à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela
Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do
Ministério da Ciência, Tecnologia e Inovação.**