AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DOS EMISSORES BETA PUROS P-32 E
Sr-90/Y-90 EM SISTEMA DE CINTILAÇÃO LÍQUIDA.**

Caio Pinheiros Marques

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

Orientadora:

Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas

São Paulo

2017

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

**DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DOS EMISSORES BETA PUROS P-32 E
Sr-90/Y-90 EM SISTEMA DE CINTILAÇÃO LÍQUIDA.**

Caio Pinheiros Marques

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

**Orientadora:
Profa. Dra. Marina Fallone Koskinas**

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2017

Àquelas que têm um reinado
absoluto e eterno em meu coração: Sueli,
Bianca e Terezinha.

*“...muitas coisas, hoje
consideradas impossíveis, se realizarão
amanhã”.*

Max Planck (1858 – 1947)

AGRADECIMENTOS

À Dr.^a Marina Fallone Koskinas, orientadora sábia e experiente, pelo acolhimento como aluno de pós-graduação. Pelas exigências que me refinaram, pelas necessárias repreensões e pela paciência em cada parte do todo – minha sincera gratidão;

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pelo conhecimento e sabedoria transmitidos em cada aconselhamento e conversa;

À minha mãe, Sueli Pinheiros dos Santos, a autora da minha vida e o propósito de todos os meus sonhos;

À minha irmã, Bianca Pinheiros Marques, amiga e confidente, pelo exemplo de força e determinação que me dá todos os dias;

A todos os familiares que não residem comigo, mas que estiveram relacionados direta ou indiretamente com o desenvolvimento deste trabalho;

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), na pessoa de seu presidente, pela concessão da bolsa de estudos;

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), na pessoa de seu superintendente e demais servidores, pela honra de ter composto a comunidade acadêmica daquele instituto;

Ao Centro do Reator de Pesquisas (CRPq), na pessoa de seu gerente e demais servidores, pela oportunidade do desenvolvimento da parte experimental deste trabalho junto ao Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN);

Ao Centro de Radiofarmácia (CR), na pessoa de seu gerente e demais servidores, pelo fornecimento das soluções radioativas de ^{32}P e $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$;

À Gerência de Rejeitos Radioativos (GRR), na pessoa de seu gerente e demais servidores, pela autorização do uso dos sistemas de cintilação líquida que lá se encontram;

A todos os meus colegas também lotados no CRPq e outros centros, quais sejam, Maria, Livia, Glauber, Jamille, Rafael Policarpo, Rafael Vanhoz e Thiago. Agradeço imensamente o acolhimento dos que lá já estavam quando eu cheguei e pela renovação trazida por aqueles que vieram depois de mim;

À minha grande amiga Mariana, pela motivação pessoal e acadêmica;

A todos aqueles que acreditaram em mim.

DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DOS EMISSORES BETA PUROS ^{32}P E $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ EM SISTEMA DE CINTILAÇÃO LÍQUIDA.

Caio Pinheiros Marques

RESUMO

No presente trabalho, foram padronizados os radionuclídeos emissores beta puros ^{32}P e $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$. O primeiro foi medido nos sistemas comerciais de cintilação líquida TRICARB 2100 e HIDEX 300SL, que utilizam, respectivamente, dois e três tubos fotomultiplicadores. A análise dos dados adquiridos pelo primeiro e segundo sistemas foi realizada pela aplicação dos métodos CIEMAT/NIST e TDCR, respectivamente. Para padronização da solução de ^{32}P , foi também utilizado o sistema $4\pi\beta$, empregando-se a técnica de autoabsorção. A solução de $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ foi padronizada no sistema de cintilação líquida, HIDEX 300SL, pelo método TDCR, e pela técnica do traçador, no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, o qual é composto por um contador proporcional à gás fluente, acoplado a dois cristais cintiladores de NaI(Tl). A taxa de desintegração foi determinada pela técnica de extrapolação, por meio de absorvedores externos. Para aplicação da técnica do traçador, foi utilizada uma solução de ^{60}Co , emissor beta-gama previamente padronizado no sistema de coincidências. Foi realizada, também, uma simulação dos processos de detecção neste sistema por meio do programa ESQUEMA, que, pela simulação de Monte Carlo, prediz a curva de extrapolação da eficiência. Os resultados obtidos para o ^{32}P nos sistemas utilizados apresentaram um bom acordo, dentro das incertezas experimentais, bem como os obtidos para o $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$, em sistema de cintilação e sistema de coincidência, apresentando bom acordo, dentro das incertezas experimentais. O resultado obtido pela técnica de Monte Carlo apresentou boa concordância com o valor obtido com o sistema de coincidência. Os resultados indicam a qualidade e boa precisão dos sistemas de detecção utilizados neste trabalho, quando empregados para fins metrológicos.

DETERMINATION OF DESINTEGRATION RATE OF THE BETA PURE EMITTERS ^{32}P AND $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ IN LIQUID SCINTILLATION SYSTEM.

Caio Pinheiros Marques

ABSTRACT

In the present work, pure beta emitters radionuclides ^{32}P and $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ were standardized. The first one was measured in commercial liquid scintillation systems TRICARB 2100 and HIDEX 300SL, which use, respectively, two and three photomultiplier tubes. The analysis of the data acquired by the first and second systems was performed using the CIEMAT / NIST and TDCR methods, respectively. For standardization of the ^{32}P solution, the $4\pi\beta$ system was also used, using the self-absorption technique. The $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ solution was standardized in the liquid scintillation system, HIDEX 300SL, by the TDCR method, and by the tracer technique, in the coincidence system $4\pi\beta-\gamma$ which is composed by a proportional counter to the flowing gas, coupled to two NaI(Tl) scintillation crystals. The rate of disintegration was determined by the extrapolation technique, by means of external absorbers. For the application of the tracer technique, a ^{60}Co solution, a beta-gamma emitter previously standardized in the coincidence system, was used. It was also performed a simulation of the detection processes in this system through the program ESQUEMA, which, by Monte Carlo simulation, predicts the efficiency extrapolation curve. The results obtained for the ^{32}P in the systems used presented a good agreement, within the experimental uncertainties, as well as those obtained for the $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$, in scintillation system and coincidence system, showing good agreement, within the experimental uncertainties. The result obtained by the Monte Carlo technique showed good agreement with the value obtained with the coincidence system. The results indicate the quality and good accuracy of the detection systems used in this work, when used for metrological purposes.

SUMÁRIO

Página

INTRODUÇÃO.....	1
1. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA.....	3
1.1 Radiação e instabilidade nuclear.....	3
1.2 Os mecanismos de desintegração nuclear.....	4
1.2.1 O decaimento beta (β).....	4
1.2.1.1 Emissão de partículas beta negativas (β^-).....	5
1.2.1.2 Emissão de partículas beta positivas (β^+).....	6
1.2.2 Captura eletrônica (CE).....	7
1.2.3 Emissão gama e conversão interna (CI).....	7
1.3 Atividade e lei do decaimento radioativo.....	9
1.3.1 Equilíbrios radioativos.....	11
1.4 Interação da radiação com a matéria.....	12
1.4.1 Radiação corpuscular e partículas carregadas.....	12
1.4.2 Interação da radiação eletromagnética com a matéria.....	13
1.4.2.1 Efeito fotoelétrico.....	13
1.4.2.2 Espalhamento Compton.....	14
1.4.2.3 Produção de pares.....	14
2. METODOLOGIA.....	17
2.1 Cintilação líquida.....	17
2.1.1 <i>Quenching</i> e interferência no processo de cintilação.....	18
2.2 Métodos aplicados em sistemas de cintilação líquida.....	19
2.2.1 Método CIEMAT/NIST.....	19
2.2.2 Método TDCR.....	22
2.3 Métodos aplicados em sistemas de coincidência $4\pi\beta$ e $4\pi\beta\text{-}\gamma$	23
2.3.1 Método por autoabsorção.....	24
2.3.2 Método do traçador.....	24
2.3.3 Método de coincidências.....	24
2.4 Técnica de extrapolação linear da eficiência.....	25
2.5 Método de Monte Carlo na simulação da curva de extrapolação linear da eficiência.....	28

2.6 Esquemas de desintegração.....	29
2.6.1 ^3H	29
2.6.2 ^{32}P	30
2.6.3 ^{60}Co	30
2.6.4 $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$	31
3. PARTE EXPERIMENTAL	33
3.1 Sistema TRICARB 2100.....	33
3.2 Sistema HIDEX 300 SL.....	34
3.3 Sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$	35
3.4 O arranjo eletrônico associado ao sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$	37
3.5 Preparação das amostras para o sistema de cintilação líquida.....	39
3.5.1 Sistema de cintilação líquida.....	39
3.6 Contador proporcional e sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$	39
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES	41
4.1 Padronização do ^{32}P	41
4.1.1 Sistema TRICARB 2100.....	41
4.1.2 Sistema HIDEX 300S SL.....	44
4.1.3 Sistema $4\pi\beta$	44
4.2 Padronização do $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$	47
4.2.1 Sistema HIDEX 300S SL.....	47
4.2.2 Padronização do $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ pelo método do traçador em sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$	48
4.3 Simulação de Monte Carlo.....	52
4.4 Análise das incertezas.....	55
5. CONCLUSÃO	56
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	57

INTRODUÇÃO

A metrologia de radionuclídeos é a ciência que se dedica à determinação, tão precisa quanto possível, do valor absoluto da atividade de fontes radioativas, realizada por meio do desenvolvimento de metodologias de padronização que se baseiam no estudo dos esquemas de desintegração do radionuclídeo escolhido e na adoção do sistema de detecção apropriado ^[1].

A aplicação de tecnologias e métodos que visam essa padronização é justificada por demandas que requerem padrões radioativos com boa exatidão e rastreabilidade. Tais exigências são verificadas em diversos campos de pesquisa básica e aplicada, bem como na indústria, agricultura e medicina.

Com respeito a esta última, destaca-se o uso de radioisótopos em medicina nuclear, dado que a atividade dos radionuclídeos administrados aos pacientes, seja em terapia, diagnóstico ou pesquisa, deve ser verificada antes da própria administração. Isso decorre da necessidade das doses serem suficientes para o fim desejado, visando a eficiência do tratamento.

Desde a sua implantação, o Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN), do Centro do Reator de Pesquisas (CRPq), desenvolve, dentre outras atividades, o aprimoramento de métodos de padronização de radionuclídeos, primários ou não, tendo participado de comparações internacionais patrocinadas pelo Bureau International des Poids et Mesures (IBPM), localizado na França, garantindo a rastreabilidade e a confiabilidade dos resultados ^[2].

Um método de padronização de radionuclídeos é dito *primário* ou *absoluto* quando a medição das grandezas é realizada com boa exatidão, dispensando a necessidade de um padrão radioativo, das informações do esquema de desintegração, bem como da eficiência de detecção do sistema ^[3].

No caso específico de emissores beta puros, ou seja, aqueles radionuclídeos que decaem unicamente por emissão de partículas beta, destacam-se o método TDCR (*triple to double coincidence ratio*) e o método CIEMAT/NIST (C/N), todos aplicados em sistemas de cintilação líquida. O método do traçador,

que é baseado no método de coincidências, bem como o método de autoabsorção, são aplicados em sistemas $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ e $4\pi(\text{PC})\beta$, respectivamente.

Os radionuclídeos selecionados para desenvolvimento de um procedimento de padronização foram o ^{32}P e ^{90}Sr - ^{90}Y , ambos emissores beta puros e fornecidos pelo Centro de Radiofarmácia (CR) do IPEN.

Para escolha do primeiro radionuclídeo, destaca-se sua aplicação em medicina nuclear para tratamento de tumores malignos cerebrais [4] e como possível agente quimioterápico no tratamento da disseminação de câncer ovariano [5]. Este radionuclídeo pode ser produzido em reatores nucleares pelas reações $^{31}\text{P}(\text{n},\gamma)^{32}\text{P}$ e pela reação $^{32}\text{S}(\text{n},\text{p})^{32}\text{P}$, sendo que, nesta última, podem estar presentes impurezas de ^{33}P e ^{35}S . O ^{32}P também pode ser produzido em cíclotrons pela reação $^{34}\text{S}(\text{d},\alpha)^{32}\text{P}$, sem impurezas.

O ^{90}Sr , por sua vez é um produto de fissão com meia vida de 28,8 anos, em equilíbrio secular com o ^{90}Y , que desintegra pela emissão de partículas beta menos com energia máxima de 2278,7 keV.

Considerando a meia vida do nuclídeo pai e a alta energia beta do nuclídeo filho, o ^{90}Sr - ^{90}Y é um radionuclídeo que apresenta grandes riscos para o meio ambiente, uma vez que está presente na natureza como resíduo (*fallout*) de explosões e acidentes nucleares, e como rejeito radioativo de plantas nucleares, podendo, ainda, ser encontrado como impureza em radiofármacos produzidos por reações de fissão como, por exemplo, no ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Ressalta-se, ainda, a grande importância do desenvolvimento de métodos de padronização de soluções radioativas em sistema primários, como proposto neste trabalho, de modo que possam ser posteriormente utilizadas para calibração de sistemas secundários.

O principal objetivo deste trabalho é a padronização das soluções radioativas de ^{32}P e ^{90}Sr - ^{90}Y pelos métodos mencionados. Os resultados, para cada um dos radionuclídeos serão, individualmente, comparados entre si.

1. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

São apresentados, neste capítulo, os conceitos essenciais em física nuclear que embasam a metodologia do presente trabalho.

1.1. Radiação e instabilidade nuclear

O termo radiação pode assumir diferentes classificações nas ciências que a estudam ^[6,7], embora, genericamente, seja empregado para descrever o transporte de massa e energia através do espaço ^[6]. À época de Rutherford, na primeira década do século XX, a expressão era compreendida como a energia que emanava de algumas classes de elementos e substâncias, como o urânio, tório, rádio e seus respectivos compostos, caracterizada pela capacidade de atravessar placas de metais e outros materiais opacos à luz ordinária ^[8]. A esse processo, de emissão de radiação por parte das fontes então conhecidas, deu-se o nome de radioatividade ^[7] – palavra proposta por Pierre e Marie Curie ^[9,10] –, e aos corpos que emitem essa energia, de radioativos ^[9].

Com a descoberta do núcleo atômico, a partir da confirmação de sua existência em 1911 ^[11], verificou-se que a radiação emitida pelas substâncias até então estudadas era proveniente de uma instabilidade no núcleo, resultado da diferença de energia do estado em que o núcleo se encontrava para o estado em que sua energia é mínima, denominado estado fundamental ^[12]. A fim de alcançá-lo, o átomo passa por um processo denominado desintegração ou decaimento nuclear, no qual a energia excedente no núcleo, que o impede de atingir este estado, é emitida por meio de certo mecanismo que vise reduzir, de alguma forma, essa desarmonia energética^[6].

O agrupamento desses processos, com menção, apenas, daqueles com maior grau de ocorrência na natureza (omitindo-se, portanto, as emissões de nucleons e fissão espontânea), pode ser feito como se segue: decaimento alfa (α), decaimento beta (podendo ser por emissão de partículas beta negativas (β^-) ou de

partículas beta positivas (β^+) e captura eletrônica (CE). Há, ainda, outros dois processos que podem acompanhar as desintegrações nucleares, funcionando como recurso adicional para liberação de energia – os processos de conversão interna (CI) e emissão gama (γ) [6]. Na FIG. 1.1, é apresentado um diagrama de radionuclídeos, no qual cada modo de decaimento é associado a uma cor. O conjunto de pontos pretos, que corresponde a todos os nuclídeos estáveis conhecidos, é comumente denominado linha de estabilidade. Destaca-se a alta ocorrência das desintegrações alfa e beta ante todas as outras mencionadas na legenda.

FIGURA 1.1 – Diagrama de Radionuclídeos [13]

1.2. Os mecanismos de desintegração nuclear

Nesta seção, são detalhados os modos pelos quais um radionuclídeo sofre decaimento, com foco naqueles que estão diretamente relacionados ao tema deste trabalho, bem como os possíveis fenômenos resultantes destes processos.

1.2.1. O decaimento beta (β)

A expressão *partículas beta* refere-se, genericamente, aos elétrons e

pósitrons que são produzidos e emitidos do núcleo de um átomo instável em razão dos processos de desintegração [14]. O decaimento beta pode se dar de duas formas: por emissão de partículas beta negativas, para núclídeos que se encontram mais à direita da linha de estabilidade, ou por emissão de partículas beta positivas, para núclídeos que se encontram mais à esquerda da linha de estabilidade [3].

Desprezando o equivalente em massa das energias de ligação dos elétrons atômicos, a energia de decaimento Q , ou seja, a energia liberada pelo núcleo durante o processo de desintegração, pode ser escrita em termos das massas nucleares do núcleo pai, do núcleo filho e da partícula beta. De modo generalizado, a energia de decaimento para as desintegrações beta é dada pela equação 1.1[7],

$$Q_{\beta} = (m_P - m_F - m_{\beta})c^2 \quad (1.1)$$

onde m_P , m_F e m_{β} são as massas no núcleo pai, filho e da partícula beta, respectivamente, e c é a velocidade de propagação da luz no vácuo. As massas do neutrino e de sua antipartícula foram desprezadas.

1.2.1.1. Emissão de partículas beta negativas (β^-)

A desintegração por emissão de partículas beta negativas (β^-) ocorre em núclídeos cuja a quantidade de nêutrons excede a de prótons. Devido a esse desequilíbrio em relação à linha de estabilidade, um nêutron se converte em um próton, conforme mostrado na equação 1.2, de forma a ocorrer o balanceamento das proporções de nucleons [3]:

$$n \rightarrow p^+ + \beta^- + \bar{\nu} \quad (1.2)$$

Para que a energia total da reação seja conservada, o núcleo também ejeta um antineutrino ($\bar{\nu}$), partícula que, com exceção de seu spin, possui características idênticas às do neutrino. Como o processo adiciona um próton no núcleo a partir do decréscimo de um nêutron, o número de massa permanece constante e o número atômico aumenta em uma unidade, como pode ser visto na equação 1.3, que representa o decaimento do ^{32}P para ^{32}S [3]:

Na FIG. 1.2, é mostrado um espectro contínuo de energia, típico do decaimento β^{-} , no qual relacionam-se as quantidades de elétrons emitidos no processo de desintegração, com suas respectivas energias.

FIGURA 1.2 – Espectro de energia do decaimento β^{-} [14]

1.2.1.2. Emissão de partículas beta positivas (β^{+})

Em contraste com a emissão de partículas beta negativas, as partículas beta positivas são emitidas em virtude de a quantidade de prótons superar a de nêutrons. Analogamente à situação anterior, e pela mesma razão, qual seja, o desequilíbrio nos constituintes do núcleo em relação à linha de estabilidade, um próton é convertido em um nêutron, conforme a reação [3]:

Como há a conversão de um próton em um nêutron, o número de massa permanece constante e o número atômico é diminuído em uma unidade. Como exemplo, a equação 1.5 apresenta o decaimento do ${}^{12}\text{N}$ para o ${}^{12}\text{C}$ [3]:

1.2.2. Captura Eletrônica (CE)

Um outro mecanismo de desintegração, que compete com a emissão de partículas beta positivas, é a captura eletrônica. Nele, um elétron, geralmente das camadas mais internas do átomo, como a camada K ou L, é capturado pelo núcleo e combinado com um próton, de forma a produzir um nêutron. Desta forma [3],

Em decorrência do processo, uma vacância é deixada na respectiva camada a qual o elétron pertencia. Desta forma, um elétron de camada mais externa passa a preencher esse espaço, movendo-se de uma camada para outra. Esses preenchimentos sucessivos, das camadas mais externas para as mais internas, resultam na produção de raio-X característico do nuclídeo filho.

Com arranjo dos elétrons nas camadas, a energia excedente pode ser emitida na forma de raio-X ou ainda transferida para um elétron orbital, que poderá ser ejetado do átomo (elétron esse denominado de elétron Auger) [3]. Se o núcleo filho, após o decaimento, ainda permanecer em um estado energético elevado, ocorre a emissão de radiação gama (γ) [3].

As equações a seguir representam um comparativo da desintegração do ${}^{22}\text{Na}$ para o ${}^{22}\text{Ne}$ por meio da emissão de pósitron e captura eletrônica, nos quais a probabilidade de decaimento são 90% e 10%, respectivamente [3]:

1.2.3. Emissão gama e conversão interna (CI)

Quando o nuclídeo filho de qualquer decaimento radioativo ainda ocupa um estado energético que não seja o fundamental, ele passa por um processo de transição, denominado transição gama, no qual a energia excedente é liberada,

principalmente, por meio de dois mecanismos que competem entre si: emissão dessa energia na forma de radiação gama (γ) e sua transferência para um elétron orbital, processo denominado de conversão interna [3,7].

Em relação ao primeiro processo, os fótons gama, provenientes do núcleo e liberados diretamente para fora do átomo sem que ocorram processos de absorção energética por parte da eletrosfera, possuem energia dada pela equação 1.9 [14]:

$$E_{\gamma} = (E_{sup} - E_{inf}) - E_{rec} \quad (1.9)$$

onde a diferença $(E_{sup} - E_{inf})$ é denominada energia de transição gama; E_{sup} corresponde à energia do nível superior ocupado pelo núcleo antes da emissão; E_{inf} é a energia do nível inferior ou fundamental ocupado pelo núcleo após a emissão e E_{rec} é a energia de recuo do núcleo, em razão da emissão do fóton, consequência direta do princípio da conservação do momento linear. Como a energia de repouso do núcleo é sempre muito maior que a energia do raio gama emitido, a energia de recuo pode ser considerada desprezível [14].

Em relação ao segundo mecanismo, a energia em excesso no núcleo é, agora, transferida para um elétron orbital pertencente a qualquer uma das camadas eletrônicas [7]. Se essa energia recebida por ele for maior do que a sua de ligação com o núcleo, o elétron, denominado elétron de conversão interna, é ejetado do átomo com energia cinética dada pela equação 1.10[3]:

$$E_{eci} = (E_i - E_f) - E_l \quad (1.10)$$

onde $(E_i - E_f)$ é numericamente idêntico à diferença $(E_{sup} - E_{inf})$ da equação 1.9, e os termos E_i e E_f são análogos a E_{sup} e E_{inf} , respectivamente; E_l corresponde à energia de ligação do elétron. Caso o processo de conversão interna ocorra com um elétron pertencente a uma camada mais interna, a vacância será preenchida por elétrons de camadas mais externas, ocasionando uma cascata de preenchimentos, como apresentado na seção anterior. À título de exemplo, o processo de conversão interna, seguido da emissão de elétrons Auger, é ilustrado na FIG.1.3.

FIGURA 1.3 –. Processo de conversão interna, seguido da emissão de elétron Auger ^[7]

O grau de competitividade entre as emissões de radiação gama e elétrons de conversão interna é expresso por meio de uma quantidade denominada coeficiente de conversão interna, denotada por α ou e/γ , que é dada pela razão entre a taxa de emissão de elétrons de conversão interna e a taxa de emissão de radiação gama com energia equivalente. Como a conversão interna pode ocorrer com elétrons que pertençam a qualquer camada eletrônica, o coeficiente de conversão interna total é dado pela soma dos coeficientes de conversão interna para cada uma das camadas ^[15].

1.3. Atividade e lei do decaimento radioativo

Considere-se uma amostra contendo N núcleos de uma mesma espécie radioativa. O número de núcleos que decaem em um intervalo de tempo dt é proporcional a esse intervalo e à quantidade de núcleos presentes na amostra. Denotando-se por $N(t)$ o número de núcleos em determinado instante t e por $-dN(t)$ os núcleos que se desintegram no intervalo dt , tem-se que ^[14]:

$$-dN = \lambda N dt \quad (1.11)$$

onde λ é o fator de proporcionalidade, denominado constante de decaimento, interpretado como a probabilidade para que um dos núcleos decaia em uma unidade de tempo. Caso a amostra seja composta por núclídeos que se desintegram por dois ou mais modos que competem entre si, a probabilidade total será dada pela soma das probabilidades individuais de cada modo ^[19]. Resolvendo a equação 1.11 para $N(t)$ e admitindo que N_0 seja a quantidade de núcleos no instante $t = 0$, tem-se que ^[14]:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.12)$$

Considerando que a taxa de desintegração (denominada atividade e representada por A) é dada pelo termo diferencial $-dN/dt$ as equações 1.11 e 1.12 fornecem ^[14],

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.13)$$

O comportamento exponencial da atividade dos radionuclídeos, expresso na equação 1.13, foi primeiramente verificado por Rutherford e Soddy ^[16], de modo a explicar os resultados de experimentos com compostos de tório. Por determinação da 15ª Conferência Geral de Pesos e Medidas, em 1975, a unidade de medida da grandeza física atividade passou a ser o becquerel (Bq) (definida como uma atividade de uma desintegração por segundo), em lugar da unidade até então adotada, o curie (Ci) ^[17]. Com frequência, ainda se utiliza esta última como unidade de medida da atividade de radionuclídeos, sendo a relação entre o becquerel e o curie dada por ^[14]:

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq} \quad (1.14)$$

Dois parâmetros muito importantes em radioatividade podem ser extraídos a partir das equações 1.12 e 1.13. O primeiro deles é a meia-vida $T_{1/2}$, que corresponde ao tempo necessário para que metade dos núcleos de uma amostra decaiam ^[17] ou, em termos de atividade, o tempo necessário para que a atividade da amostra seja reduzida à metade. Demonstra-se matematicamente que a meia-vida de um radionuclídeo é dada por ^[18]:

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (1.15)$$

O segundo parâmetro, denominado tempo médio (τ), é o intervalo de tempo aproximado que um núcleo radioativo sobrevive antes de sofrer uma desintegração [7]. O intervalo de tempo é dito *médio*, uma vez que o decaimento nuclear é um processo estocástico e, em decorrência disso, não se sabe com certeza quanto tempo o núcleo vai sobreviver antes de decair. Demonstra-se que a vida média de um nuclídeo radioativo é dada pela equação 1.16 [18]:

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \quad (1.16)$$

1.3.1. Equilíbrios radioativos

Considerando apenas a associação núcleo pai e núcleo filho, ou seja, aquela em que o filho é instável, as possíveis relações entre as atividades de cada um deles podem ser classificadas em: equilíbrio secular, equilíbrio transiente ou sem equilíbrio [6].

Quando as atividades dos nuclídeos pai e filho tornam-se, em certo instante, iguais, é dito que os dois estão em equilíbrio secular. Dois critérios importantes estabelecem as condições para que ocorra esse tipo de equilíbrio entre os dois nuclídeos. O primeiro requer que a meia-vida do núcleo pai seja alta (ou seja, que não sejam verificados decaimentos durante o tempo em que se considera avaliar o equilíbrio entre pai e filho); e o segundo requer que a razão entre as constantes de decaimento do pai e do filho seja aproximadamente da ordem de 10^4 ou, ainda, que a constante de decaimento do pai seja muito maior que a do filho.

Com isso [3],

$$\lambda_p \ll \lambda_f \quad (1.17)$$

Como exemplo, observa-se que o ^{90}Sr está em equilíbrio secular com seu filho, o ^{90}Y , em decorrência da observância dos critérios acima mencionados.

Quando a constante de decaimento do núcleo pai não for muito menor que a do filho, mas apenas ligeiramente menor [6]

$$\lambda_p < \lambda_f \quad (1.18)$$

O equilíbrio entre os dois é dito transiente (sendo a única condição de ocorrência aquela expressa pela equação anterior e suas atividades não são iguais e diferem por uma fração constante, representada pelo termo $\frac{\lambda_p}{\lambda_t}$ [6]:

$$\frac{A_p}{A_f} \cong 1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_t} \quad (1.19)$$

Em situações em que a constante de decaimento do núcleo pai é maior que a do filho, é dito que os dois núclídeos não estão em equilíbrio.

1.4. Interação da radiação com a matéria

Nesta seção, são apresentados os mecanismos pelos quais a radiação transfere energia para a matéria.

1.4.1. Radiação corpuscular e partículas carregadas

As radiações corpusculares, ou seja, aquelas que são emitidas do núcleo sob a forma de partículas, podem ser organizadas em, no mínimo, três grupos: partículas carregadas leves, que correspondem aos elétrons, com massa em repouso m_0 ; partículas carregadas pesadas, que são aquelas que possuem massa $M \gg m_0$ (partículas alfas, por exemplo) e partículas com carga nula, que correspondem aos nêutrons^[7,15].

Com menção específica às partículas carregadas leves (que serão, daqui em diante, nomeadas simplesmente de partículas beta), os principais mecanismos pelos quais elas perdem energia ao interagirem com o meio absorvedor, ou seja, aquele em que a radiação está incidindo, são ^[15]:

1. Colisão inelástica com os elétrons atômicos, no qual o resultado dessas colisões dá origem aos fenômenos de ionização e excitação dos átomos do meio absorvedor. É a forma mais comum pela qual as partículas beta perdem energia nos absorvedores ^[7];

2. Colisão elástica com os elétrons atômicos, onde a energia total e o momento linear das partículas beta incidentes são conservados. No entanto, colisões deste tipo são significantes apenas para partículas beta com energia menor que 100 eV [15].

3. Colisão inelástica com o núcleo, no qual as partículas beta perdem energia cinética em razão da frenagem sofrida quando da interação com o núcleo (energia essa comumente denominada de *Bremsstrahlung*) [7]; e

4. Colisão elástica com o núcleo, onde as partículas beta sofrem deflexão, mas não perda de energia em decorrência da colisão com o núcleo [7].

1.4.2. Interação da radiação eletromagnética com a matéria

A ausência de massa e carga elétrica dos fótons que interagem com meios absorvedores, ora na forma de radiação gama, ora na forma de radiação-X, altera drasticamente os mecanismos pelos quais essas partículas perdem energia naqueles meios. Três processos, que são tidos como os principais modos de transferência de energia para o material absorvedor, são discutidos nesta subseção: o efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e produção de pares.

1.4.2.1. Efeito fotoelétrico

Os fótons que incidem sobre um material absorvedor podem transferir integralmente sua energia para os elétrons dos átomos que o compõem. Quando isso ocorre, o elétron que recebeu a energia (denominado fotoelétron) é ejetado do átomo com energia cinética dada por [3]:

$$E_{\text{fotoelétron}} = h\nu - \phi \quad (1.20)$$

onde h é a constante de Planck, ν a frequência associada à radiação eletromagnética e, por consequência, ao próprio fóton e o produto $h\nu$ corresponde à energia do fóton incidente; ϕ é a energia de ligação do elétron. Como o elétron é ejetado do átomo, uma vacância é deixada, podendo ocorrer os efeitos em cascata e suas consequências, como descritos na seção 1.2.2.

1.4.2.2. Espalhamento Compton

Em contraste com o efeito fotoelétrico, no qual toda a energia do fóton incidente é cedida para um elétron atômico, o espalhamento Compton consiste na transferência parcial dessa energia para o elétron orbital. Ao fazer isso, o fóton e o elétron, agora desprendido do átomo, são espalhados sob os ângulos Θ e θ , respectivamente, conforme ilustrado na FIG. 1.4. A relação entre o comprimento de onda do fóton antes da colisão com o elétron orbital, λ_1 , e o comprimento de onda do fóton depois da colisão, λ_2 , é dada pela equação de Compton [3]:

$$\lambda_1 - \lambda_2 = \frac{h\nu}{m_0c}(1 - \cos\Theta) \quad (1.21)$$

FIGURA1.4 –. Espalhamento Compton [3].

Após sua deflexão, o fóton continua a se mover no absorvedor, até que toda a sua energia seja perdida. Assumindo que a energia do fóton antes e após da interação sejam E_1 e E_2 , respectivamente, a energia com que o elétron é emitido no espalhamento Compton é dada pela equação 1.22 [3]:

$$E_e = E_1 - E_2 - \phi \quad (1.22)$$

1.4.2.3. Produção de pares

O terceiro dos principais mecanismos pelos quais a radiação eletromagnética interage com a matéria é denominado produção de pares. Nesse

processo, que é ilustrado na FIG. 1.5, o fóton incidente interage com o campo coulombiano do núcleo, produzindo um pósitron e um nêutron. A energia mínima do fóton requerida para produzir ambas as partículas é dada por [3]:

$$E = 2m_0c^2 \quad (1.23)$$

Aplicando-a, encontra-se que a energia mínima requerida para a produção dos dois elétrons é de 1022 keV, ou seja, sempre que o fóton incidente possuir uma energia maior que a mencionada logo acima, o fenômeno de produção de pares será possível. Caso a energia seja maior do que essa, o excesso aparecerá como um acréscimo na energia cinética das partículas beta positiva e negativa [3]

FIGURA1.5 –. Processo de produção de pares [3]

Na FIG. 1.6 são apresentadas as regiões de predominância dos processos discutidos nesta seção, em termos do número atômico do material absorvedor e da energia do fóton incidente.

FIGURA1.6 –. Regiões de predominância dos principais mecanismos de interação da radiação eletromagnética com a matéria ^[19]

2. METODOLOGIA

Neste capítulo, são apresentados os princípios de funcionamento dos sistemas de detecção empregados na determinação da atividade dos radionuclídeos ^{32}P e $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$, bem como os métodos aplicados em cada um destes sistemas.

2.1. Cintilação líquida

A cintilação líquida é baseada no mecanismo de excitação resultante da deposição do material radioativo em um meio líquido homogêneo, comumente denominado de solução cintiladora, e da captação dos fótons emitidos em decorrência dessa excitação, sendo utilizados tubos fotomultiplicadores (TFM) para coleção dos fótons emitidos. A interação dos fótons com os TFM propicia uma avalanche de eventos, que será medida como um pulso elétrico [3]

O processo de cintilação, representado de forma simplificada, é apresentado na FIG. 2.1.

FIGURA 2.1 – Processo de cintilação simplificado [3]

As soluções cintiladoras, nas quais o material radioativo é depositado, são compostas por um solvente orgânico, um cintilador orgânico e um surfactante, que agirá como emulsificador da solução, tornando-a estável e homogênea [3].

O processo de cintilação se inicia pela interação da radiação com as moléculas do solvente. Em razão da diferença de concentração de solvente e soluto

no coquetel, no qual o primeiro está em maior quantidade, as moléculas do solvente absorverão a maior parte da radiação emitida pela amostra. Como resultado, há a formação de moléculas de solvente ativadas (excitadas), que transferem energia para o cintilador [3].

Tão logo as moléculas do cintilador recebem essa energia, elas reemitem-na rapidamente, retornando para o estado fundamental por meio de um mecanismo de fluorescência. Desta forma, a energia é liberada na forma de emissão de fótons de comprimento de onda variável (375 – 430 nm), que depende fortemente do cintilador dissolvido no coquetel [3].

2.1.1. *Quenching* e interferência no processo de cintilação

Nas etapas de cintilação, percorridas nos parágrafos anteriores, as contagens podem ser diminuídas quando existir algum fator que reduza a transferência de energia em qualquer parte do processo, de forma a diminuir a quantidade de fótons captados pelo TFM. Tal fenômeno, de interferência na cintilação, é denominado *quenching* e os dois modos mais comuns de sua ocorrência, identificadas na parte inferior da FIG. 2.1, são: *quenching* químico e *quenching* de cor [3]

O primeiro deles, o químico, é causado pela presença de agentes químicos no coquetel cintilador, que absorvem a energia do decaimento nuclear, obstruindo, com isso, a sua integral transferência para a solução cintiladora. Com a transferência parcial de energia, diminui-se, por consequência, a produção de fótons. Como a maioria dos coquetéis são predominantemente compostos de substâncias químicas, o *quenching* químico ocorre praticamente em todas as medições que façam uso dessas soluções.

Já o segundo mecanismo, o *quenching* de cor, ocorre quando a amostra a ser analisada, que se espera ser transparente, é vista com alguma coloração. O processo age de modo a absorver os fótons produzidos, fazendo com que eles não sejam captados pelos TFM, diminuindo o número de registros realizados pelo sistema. Como todas as formas de *quenching* têm, por efeito, a diminuição da produção de fótons, espera-se que o espectro de energia obtido a partir da análise de uma amostra com altos níveis de *quenching* esteja deslocado em altura e

comprimento em relação ao espectro obtido de uma amostra com níveis mínimos. Essa comparação é ilustrada na FIG. 2.2.

FIGURA 2.2 – Comparação entre os espectros obtidos a partir de uma amostra com altos e mínimos níveis de *quenching* ^[3]

Existem diversos coquetéis cintiladores comerciais, tais como Pico-fluor™, Opti-fluor™, Insta-Gel Plus™ e Ultima Gold™, este último foi utilizado neste trabalho por apresentar maior eficiência de detecção e maior resistência ao *quenching* ^[20]

2.2. Métodos aplicados em sistemas de cintilação líquida

Nesta seção serão apresentados os métodos aplicados em sistema de cintilação líquida que foram utilizados no presente trabalho.

2.2.1. Método CIEMAT/NIST

O método CIEMAT/NIST ^[21] é um método primário, aplicado em sistemas de cintilação líquida constituídos de dois TFM operados em coincidência, e que pode ser dividido, à título de descrição, em duas partes.

Na primeira, obtêm-se uma curva relacionando-se a eficiência experimental de um radionuclídeo previamente padronizado (^3H , por exemplo) com seu respectivo parâmetro indicador de *quenching* (QIP), que, em termos gerais, é

a quantificação do *quenching* da amostra, e outra relacionando a eficiência experimental do mesmo radionuclídeo com sua Figura de Mérito. Esta quantidade é um componente essencial no cálculo teórico da eficiência de contagem e é definida como a energia da partícula beta, em keV, requerida para produzir um fotoelétron pelo fotocátodo [3]. Uma vez que ambas as curvas têm em comum a eficiência de contagem, é possível obter uma terceira, relacionando a Figura de Mérito e o QIP. Esta curva, embora dependa de outros fatores, não depende do radionuclídeo em análise, razão, pela qual, é denominada curva universal [22]

A segunda parte consiste em relacionar a eficiência de contagem com a Figura de Mérito do radionuclídeo a ser padronizado. Por meio da curva universal e tomando a Figura de Mérito como uma quantidade comum aos dois radionuclídeos, obtêm-se uma curva que fornece a eficiência do radionuclídeo a ser padronizado como função de seu QIP, possibilitando a determinação da atividade do radionuclídeo [22]

Na FIG.2.3, é apresentado o diagrama do método CIEMAT/NIST. A determinação das eficiências teóricas do ^3H e do radionuclídeo em estudo é feita por meio de códigos computacionais, como o CN2001[23].

FIGURA 2.3 – Diagrama de blocos do processo de aplicação do método CIEMAT/NIST

A eficiência experimental das amostras do radionuclídeo padrão é dada por:

$$\varepsilon(QIP)_i = \frac{C(QIP)_i}{Am} \quad (2.1)$$

onde $\varepsilon(QIP)_i$ é a eficiência experimental relacionada ao i -ésimo QIP; $C(QIP)_i$ corresponde à taxa de contagem corrigida para a radiação de fundo, relacionada ao i -ésimo QIP; QIP_i é o fator indicador de *quenching* fornecido pelo sistema de detecção; A é a atividade específica do padrão na data da medida e m é a massa da amostra do radionuclídeo padrão relacionada ao i -ésimo QIP.

A atividade das amostras do radionuclídeo de interesse é dada pela equação 2.2:

$$A(QIP)_i = \frac{C(QIP)_i}{\varepsilon(QIP)_i m} \quad (2.2)$$

2.2.2. Método TDCR

O método TDCR ^[24] é um método absoluto desenvolvido especialmente para a determinação da atividade de radionuclídeos que decaem por emissão de partículas beta e por captura eletrônica, sendo aplicado em sistemas que fazem uso de três TFM (a, b, c), posicionadas em um ângulo relativo de 120°, operados em coincidência. Dentre as vantagens do método, destaca-se a dispensa do uso de um radionuclídeo padrão para a determinação da atividade do radionuclídeo de interesse, como o ³H, no método CIEMAT/NIST. A FIG. 2.4 apresenta um diagrama básico de um sistema de detecção no qual se aplica o método TDCR, onde as letras P, A, D, C e S representam, respectivamente, os módulos pré-amplificador, amplificador, discriminador, o módulo de coincidência e o de soma.

FIGURA 2.4 – Diagrama simplificado do sistema de detecção em que é aplicado o método TDCR ^[24]

As taxas de contagem de coincidência dos três TFM são registradas duas a duas (N_{AB} , N_{AC} , N_{BC}), assim como é feito o registro da taxa de coincidência tripla, obtendo-se também a soma das taxas de coincidência dupla N_D . A relação aritmética entre estas taxas é dada por ^[24,25]:

$$N_D = N_{AB} + N_{BC} + N_{AC} - 2N_T \quad (2.3)$$

$$N_T = N_{ABC} \quad (2.4)$$

onde N_{ABC} é a taxa de contagem das coincidências triplas para os três TFM A, B e C; N_{AB} é a taxa de contagem das coincidências duplas para os TFM A e B; N_{AC} é a taxa de contagem das coincidências duplas para os TFM A e C e N_{BC} é a taxa de contagem das coincidências duplas para os TFM A e B.

As taxas de coincidências duplas e triplas são dadas por:

$$N_D = N_0 \varepsilon_D \quad (2.5)$$

$$N_T = N_0 \varepsilon_T \quad (2.6)$$

onde ε_D e ε_T são as eficiências das contagens duplas e triplas, respectivamente, e N_0 é a atividade.

Para um grande número de eventos detectados, a razão N_T/N_D converge para a razão $\varepsilon_T/\varepsilon_D$ dada por^[26]:

$$N_T/N_D \rightarrow \varepsilon_T/\varepsilon_D = \varepsilon_{TDCR} \quad (2.7)$$

Para a medida de emissores beta puros, a ε_{TDCR} pode ser considerada igual à eficiência ε_D . Assim, determina-se a atividade pela equação ^[26]

$$N_0 = N_D / \varepsilon_{TDCR} \quad (2.8)$$

2.3. Métodos aplicados em sistemas de coincidência $4\pi\beta$ e $4\pi\beta\text{-}\gamma$

Nesta subseção são apresentados os métodos aplicados em sistemas de coincidência $4\pi(\text{PC})\beta$ e $4\pi(\text{PC})\beta\text{-}\gamma$ que foram utilizados neste trabalho.

2.3.1. Método por autoabsorção

O método por autoabsorção consiste na medição, em um sistema de $4\pi(PC)\beta$, de diversas fontes sólidas de um emissor beta puro preparado em substratos de Collodion, com várias alíquotas da solução. Por meio dessas medidas, uma curva é obtida relacionando-se a taxa de contagem $N_\beta(\text{cps mg}^{-1})$ vs a massa das respectivas fontes (mg) [27].

Admitindo que a eficiência de detecção diminui com o aumento da massa, extrapola-se essa curva para massa zero, cenário em que a autoabsorção na fonte é mínima, encontrando-se a taxa de desintegração do radionuclídeo. Uma curva é ajustada pelo método de mínimos quadrados considerando-se as incertezas pela metodologia de covariância. O intercepto no eixo das ordenadas corresponde à atividade N_0 .

2.3.2. Método do Traçador

O método do traçador consiste na medida do emissor beta puro, cuja atividade deseja-se determinar, juntamente com um emissor $\beta-\gamma$ (denominado traçador), com atividade previamente conhecida em um sistema de coincidências. Este método foi desenvolvido por Baerg [28], tendo por base o método de coincidências.

A escolha do emissor beta-gama a ser utilizado como traçador é feita considerando que o radionuclídeo deva apresentar um esquema de desintegração simples e que sua energia beta máxima seja, tanto quanto possível, próxima da energia beta máxima do emissor beta puro.

2.3.3. Método de coincidências

O método das coincidências é um método primário utilizado na padronização de radionuclídeos que se desintegram pela emissão simultânea de duas radiações distintas, tais como, por exemplo, $\alpha-\gamma$ e $\beta-\gamma$ [29]. O arranjo simplificado do sistema de coincidências, que pode ser visto na FIG.2.5, consiste em dois detectores e um módulo de coincidência, que detecta os eventos com ocorrência simultânea.

FIGURA 2.5 – Arranjo simplificado do sistema de coincidências ^[29]

Para situações simples, nos quais o decaimento se dá apenas por meio da emissão de uma partícula beta seguida de uma radiação gama, as contagens registradas em cada uma das vias de detecção são dadas pelas equações abaixo^[1]:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (2.9)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (2.10)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (2.11)$$

onde N_{β} , N_{γ} e N_c são as taxas de contagens nas vias de detecção beta, gama e eventos em coincidência, respectivamente; N_0 é a atividade da fonte e ε_{β} e ε_{γ} são as eficiências de detecção nas vias beta e gama, respectivamente. Das equações anteriores, verifica-se que ^[1]:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (2.12)$$

na qual a atividade da fonte pode ser calculada apenas tendo conhecimento das contagens em coincidência, bem como daquelas registradas nas vias beta e gama.

2.4. Técnica de extrapolação linear da eficiência

Caso os esquemas de decaimento sejam mais complexos do que

aqueles em que as equações 2.9, 2.10 e 2.11 estão baseadas, e no caso de um dos detectores ser sensível a outros tipos de radiação, as equações podem ser modificadas para considerar estas detecções, neste caso as equações são:

$$N_{\beta} = N_0 \left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.13)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon'_{\gamma} \quad (2.14)$$

$$N_c = N_0 \left[\varepsilon_{\beta} \varepsilon'_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{cr} \right] \quad (2.15)$$

Com $\varepsilon'_{\gamma} = \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha}$ e onde α é o coeficiente de conversão interna total; ε_{cr} é a eficiência para contagens de coincidência gama-gama; ε_{ec} é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão; $\varepsilon_{\beta\gamma}$ é a eficiência do detector beta para a radiação gama.

Procedendo-se analogamente à equação 2.4, tem-se que^[1]:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right]}{\left[\varepsilon_{\beta} \varepsilon'_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{cr} \right]} \left[\varepsilon'_{\gamma} \right] \quad (2.16)$$

Diferente do que pode ser visto na equação 2.12, a equação 2.16 mostra que a determinação de N_0 depende do conhecimento de uma série de parâmetros, tais como as informações do esquema de decaimento do radionuclídeo, bem como das eficiências de detecção em cada uma das vias.

Quando a medida da via gama é feita considerando-se apenas as contagens no fotopico de absorção total, a eficiência para contagens de coincidência gama-gama é nula, e a equação 2.16 pode ser reescrita como:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}} \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.17)$$

De forma a superar essas requisições e tornar o problema mais simples

quanto se possa, estabelece-se uma relação funcional entre N_β e a razão $\frac{N_c}{N_\gamma}$, denominada parâmetro de eficiência, de forma que $N_\beta \rightarrow N_0$ quando $\frac{N_c}{N_\gamma} \rightarrow 1$.

Pode-se escrever N_β como uma função F do parâmetro de eficiência, no caso em que haja mais de um ramo beta. Neste caso, pode ser considerado que a eficiência dos vários ramos beta pode ser representada como função de uma eficiência única^[30,31]. Com isso:

$$N_\beta = N_0 F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \quad (2.18)$$

A fórmula de coincidência pode ser reescrita de forma mais apropriada, admitindo-se a razão $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ como variável dependente e $\frac{(1 - \frac{N_c}{N_\gamma})}{\frac{N_c}{N_\gamma}}$ como variável independente, gerando uma função G , tal que:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 G\left(\frac{(1 - \frac{N_c}{N_\gamma})}{\frac{N_c}{N_\gamma}}\right) \quad (2.19)$$

Na equação 2.10, quando $\frac{(1 - \frac{N_c}{N_\gamma})}{\frac{N_c}{N_\gamma}} \rightarrow 0$ e $G \rightarrow 1$, $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_0$.

Obtêm-se a atividade do radionuclídeo a partir da determinação experimental de G pelo uso de absorvedores, discriminação eletrônica ou qualquer outro método que permita que esses valores variem, de forma que se construa uma

curva relacionando-se $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ com $\frac{(1 - \frac{N_c}{N_\gamma})}{\frac{N_c}{N_\gamma}}$. Esta curva é denominada curva de

extrapolação linear de eficiência, que fornece o valor de N_0 .

Na aplicação do método do traçador, os eventos que são detectados no contador proporcional quando da medição da fonte mista, são dados pela equação

$$N_{\beta(T+P)} = N_{0T} \varepsilon_{\beta T} + N_{0P} \varepsilon_{\beta} \quad (2.20)$$

onde os subscritos **T** e **P** referem-se ao nuclídeo traçador e beta puro, respectivamente. Uma vez combinados em uma mesma fonte, as eficiências de detecção dos nuclídeos passam a se relacionar por uma função polinomial **G**, tal que:

$$\left(\frac{1 - \varepsilon_{\beta P}}{\varepsilon_{\beta P}} \right) = G \left(\frac{1 - \varepsilon_{\beta T}}{\varepsilon_{\beta T}} \right) \quad (2.21)$$

A atividade do emissor beta puro pode ser calculada por meio da equação:

$$\frac{N_{\beta(T+P)} N_{\gamma}}{N_C} - N_{0T} = N_{0P} \left[1 + G' \left(\frac{1 - \varepsilon_{\beta T}}{\varepsilon_{\beta T}} \right) \right] \quad (2.22)$$

onde **G'** relaciona as eficiências beta do emissor beta puro e do traçador. A função **G'** $\rightarrow 0$, quando $(1 - N_C/N_{\gamma}) / N_C/N_{\gamma} \rightarrow 0$. Resolvendo a equação 2.22 por meio de um ajuste polinomial de mínimos quadrados, o coeficiente linear fornece a atividade do emissor beta puro.

2.5. Método de Monte Carlo na simulação da curva de extrapolação linear da eficiência

O Método de Monte Carlo é um método numérico baseado em processos estatísticos, permitindo solucionar problemas físicos e matemáticos por meio de simulações de natureza aleatória. Destaca-se sua habitual utilização em problemas de transporte de partículas, especialmente no que concerne aos fótons e nêutrons^[32].

A curva de extrapolação da eficiência, apresentada na subseção anterior como uma das partes do processo de aplicação do método do traçador, pode ser simulada pela técnica de Monte Carlo por meio do programa ESQUEMA^[32], que é alimentado com valores de transporte da radiação por outro programa, denominado MCNP5^[33].

O programa ESQUEMA permite simular o processo de medição de uma amostra radioativa e, por consequência, todo o processo de detecção da radiação proveniente dela, desde a desintegração do radionuclídeo até a transferência da energia para o detector, bem como todos os efeitos que disso decorrem. Com isso, podem ser adotadas melhores condições de medição e realizadas comparações entre os dados experimentais e os fornecidos pela simulação.

2.6. Esquemas de desintegração

Nesta seção são apresentados os esquemas de desintegração dos radionuclídeos utilizados nesse trabalho.

2.6.1. ^3H

O ^3H tem meia-vida de 12,312 (25) anos e decai com 100% de probabilidade por emissão β^- para o estado fundamental do ^3He , com uma energia de 18,591(1) keV [34].

FIGURA 2.6 – Esquema de desintegração do ^3H

2.6.2. ^{32}P

O ^{32}P tem meia-vida de 14,284 (36) dias e decai com 100% de probabilidade por emissão β^- para o estado fundamental do ^{32}S , com uma energia máxima de 1710,66 (21) keV [35]. Na FIG.2.7, é ilustrado o seu esquema de desintegração.

FIGURA 2.7 – Esquema de desintegração do ^{32}P

2.6.3. ^{60}Co

O ^{60}Co tem meia-vida de 5,2710 (8) anos e decai com 99,88 (3)% de probabilidade por emissão β^- para o estado excitado do ^{60}Ni , com uma energia máxima de 317,32 (21) keV [36].

FIGURA 2.8 – Esquema de desintegração do ^{60}Co

2.6.4. $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$

O $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$, radionuclídeos em equilíbrio secular, tem meia-vida de 28,80 (7) anos e 2,6684 (13) dias, respectivamente. O ^{90}Sr decai com 100% de probabilidade por emissão β^- para o ^{90}Y , com uma energia de 545,9 (14) keV e o ^{90}Y , também por esse modo de decaimento, mas com probabilidade de 99,993 (7), decai para o estado fundamental do ^{90}Zr com uma energia de 2278,7 (16) keV^[37,38]. Nas FIG.2.9 e 2.10, são mostrados os seus esquemas de desintegração.

FIGURA 2.9 – Esquema de desintegração do ^{90}Sr

FIGURA 2.10 – Esquema de desintegração do ^{90}Y

3. PARTE EXPERIMENTAL

A seguir serão apresentados os sistemas de medida utilizados para padronização das soluções radioativas de ^{32}P e ^{90}Sr - ^{90}Y .

3.1. Sistema TRICARB 2100

O sistema de cintilação TRICARB 2100 é um sistema comercial baseado no processo de cintilação líquida, que detecta fótons emitidos pela amostra (no caso, os frascos contendo o material radioativo depositado no coquetel cintilador) por meio de dois TFM operando em coincidência, conforme pode ser visto na FIG. 3.1.

FIGURA 3.1 – Diagrama de blocos do arranjo eletrônico associado ao sistema TRICARB 2100 [39]

Os eventos são somados, amplificados, digitalizados sendo analisados e registrados por um analisador multicanal apenas os sinais coincidentes. A escolha dos parâmetros dos ciclos de contagem é realizada por meio de um monitor acoplado ao sistema e os dados de saída são impressos. Na FIG. 3.2 é mostrado o sistema de detecção TRICARB 2100.

FIGURA 3.2 – Sistema TRICARB 2100

Nas medições realizadas por este sistema de cintilação, não é fornecida diretamente a atividade de cada uma das amostras. Para que ela possa ser calculada, aplica-se o método CIEMAT/NIST, que faz uso dos valores quantificados do *quenching* (QIP) das fontes em análise. O sistema faz essa quantificação por meio do método tSIE (transformed Spectral Index of the External standard), que é calculado com base no efeito Compton no espectro em análise ocasionado por uma fonte gama externa (^{133}Ba), que é aproximada da amostra por um período de um minuto [40]. Os valores encontrados variam dentro de uma escala arbitrária, de 0 a 1000, onde zero corresponde a uma amostra com nível máximo de *quenching* e 1000 a uma amostra sem *quenching*.

3.2. Sistema HIDEX 300SL

O HIDEX 300SL é um sistema comercial constituído por três TFM operando em coincidência, no qual as amostras são inseridas em uma bandeja localizada na parte inferior do sistema, conforme pode ser visto na FIG 3.3. Os parâmetros da medida são configurados pelo software MicroWin 2000™, instalado em um computador associado ao sistema,

FIGURA 3.3 – Sistema HIDEX 300SL

Os dados de saída, diferentemente do sistema TRICARB 2100, são digitais e coletados no formato de arquivos de texto. Dentre outras informações, esse sistema fornece as taxas de contagem por minuto (CPM), a eficiência TDCR e a atividade em desintegrações por minuto (DPM).

3.3. Sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$

O sistema de coincidências utilizado neste trabalho é constituído por um contador proporcional com geometria 4π , para detecção da radiação beta, e dois cristais cintiladores de NaI(Tl), para detecção da radiação gama.

O contador proporcional consiste em um volume sensível preenchido com uma mistura de gás fluente, composto por 10% de metano e 90% de argônio, operado à pressão de 0,1 MPa. A amostra contendo o material radioativo depositado é posicionada em seu interior, conforme mostrado na FIG. 3.4, na qual é apresentada a estrutura interna do contador proporcional [41].

FIGURA 3.4 – Estrutura interna de um contador proporcional com geometria 4π ^[19]

A radiação proveniente da amostra ioniza a mistura gasosa, produzindo pares de íons primários com alta energia cinética. Estes, durante o processo de coleção por parte dos anodos do sistema, colidem com outros átomos e moléculas, induzindo uma ionização secundária na mistura. Esse processo de multiplicação é denominado cascata ou avalanche de Townsend ^[3]. O termo *proporcional* refere-se à proporcionalidade existente entre o número de íons formados após a amplificação do gás e o número de íons primários, resultado da ação direta da radiação sobre o gás.

Com relação aos cristais cintiladores de NaI(Tl), os fótons que são emitidos pela amostra radioativa interagem no cristal, produzindo ionizações em decorrência do processo de cintilação que ocorre com as moléculas que constituem o cristal, quando da passagem do estado excitado para o fundamental. Essa luz produzida é captada por uma célula fotomultiplicadora, que a converte em uma corrente de elétrons, cuja altura do pulso é proporcional à energia do fóton incidente no cristal ^[41]. O arranjo experimental do sistema de coincidências é apresentado na FIG 3.5.

FIGURA 3.5 – Arranjo experimental do sistema de coincidências.

3.4. O arranjo eletrônico associado ao sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$

Cada um dos detectores do sistema de coincidências está conectado a equipamentos eletrônicos que, uma vez ajustados, permitem realizar a aquisição dos dados^[39]. Este arranjo, representado na FIG 3.6, é composto de duas vias distintas, β e γ , cada uma destinada a um tipo de detector.

Na via β , que compreende o sistema eletrônico associado ao contador proporcional, os pulsos provenientes dos anodos são pré-amplificados e, em seguida, amplificados. Na detecção beta, o ruído eletrônico é discriminado por meio de um analisador monocanal com atrasador (*Single Channel Analyser-Timing* ou *SCA-Timing*). Após essa discriminação, os pulsos são enviados para um módulo de porta e atraso (*Gate and Delay Generator*), que fixa o atraso para a separação dos pulsos no espectro da medida, e, então, enviados para um conversor de tempo e altura de pulso (módulo TAC), para o registro dos eventos ^[39].

Já na via γ , que compreende o sistema eletrônico associado ao detector cintilador NaI(Tl), os pulsos originários dos dois detectores são amplificados e somados, de forma que se produza um sinal único. Nesta via, a medida é feita a partir da seleção da região do espectro gama referente a um ou mais picos de absorção total, no qual essa discriminação também é feita pelo *SCS-Timing*. Após isso, os pulsos são tratados de modo semelhante aos da via β .

FIGURA 3.6 – Arranjo eletrônico associado ao sistema de coincidências [39]

3.5. Preparação das amostras

A seguir são descritos os modos pelos quais as amostras são preparadas para os sistemas de cintilação líquida e para o sistema de coincidências.

3.5.1. Sistema de cintilação líquida

A solução de ^{32}P fornecida pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN e foi diluída em água destilada para obtenção de uma atividade da ordem de 300kBq/g, sendo esta a taxa adequada para as medidas nos sistemas selecionados. As amostras para o sistema de cintilação líquida foram preparadas utilizando-se frascos de polietileno, onde foi depositado, por meio de uma pipeta calibrada, 15 mL do coquetel cintilador comercial Ultima Gold™. O material radioativo foi depositado nos frascos de cintilação pela técnica do picnômetro e a massa depositada foi medida em balança microanalítica Mettler XP56.

Além do coquetel cintilador, nas amostras preparadas para medida pelo método CIEMAT/NIST foram adicionados 1 mL de H_2O (miliQ) e alíquotas distintas de nitrometano, por meio de uma pipeta calibrada, que atuou como agente *quenching*. Para o padrão de ^3H , foram utilizadas amostras previamente preparadas, contendo as mesmas quantidades de coquetel cintilador, de água e de nitrometano.

A solução de ^{90}Sr – ^{90}Y também foi fornecida pelo CR e o modo de preparação das amostras a serem medidas foi realizado de forma análoga ao adotado para a solução de ^{32}P .

3.5.2. Contador proporcional e sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

A partir da mesma diluição de preparação das fontes de ^{32}P para a cintilação líquida, a solução radioativa foi depositada, por meio de um picnômetro, em filmes de Collodion metalizados com ouro, para torná-los condutores, com espessura total de $50 \mu\text{g cm}^{-2}$, sendo a massa do material depositado medida em balança microanalítica Mettler XP56. Antes de serem medidas no contador proporcional, as fontes foram secas em jato de nitrogênio à temperatura de 45°C .

Para as medidas no sistema de coincidência $4\pi(\text{PC})\beta\text{--}\gamma$, foram preparados dois grupos de amostras: um contendo apenas deposição de solução de ^{60}Co e outro contendo deposição mista de ^{60}Co e $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$. As deposições foram realizadas por meio de um picnômetro, em filmes de Collodion metalizados com ouro, para torná-los condutores, com espessura total de $50 \mu\text{g cm}^{-2}$. A massa do material depositado foi medida em balança microanalítica Mettler XP56. Antes de serem medidas no contador proporcional, as fontes foram secas em uma dissecadora.

Para que o método do traçador pudesse ser aplicado, as fontes contendo a solução mista de ^{60}Co e $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ foram medidas com absorvedores externos posicionados sobre elas, para variação da eficiência. Os absorvedores escolhidos foram filmes adicionais de Collodion e folhas de alumínio.

4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos na padronização das soluções radioativas de ^{32}P e ^{90}Sr - ^{90}Y empregando os sistemas de cintilação líquida e os sistemas de coincidência $4\pi\beta$ e $4\pi\beta$ - γ .

4.1. Padronização do ^{32}P

4.1.1. Sistema TRICARB 2100

Na TAB. 4.1, são apresentadas as massas, as quantidades de nitrometano (agente *quenching*), os fatores indicadores de *quenching* medidos (tSIE) e as eficiências experimentais obtidas com o padrão de ^3H medidas pelo método C/N no sistema TRICARB 2100. As medidas foram realizadas em 3 ciclos de 30 minutos cada, sendo os valores de tSIE e das eficiências a média das três medidas com o correspondente desvio padrão.

O padrão de ^3H foi fornecido pelo Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) do Instituto de Dosimetria e Radioproteção (IRD), no Rio de Janeiro, com uma atividade de $(48,0 \pm 8)$ kBq/g. A incerteza na massa de cada uma das amostras é de 0,2 %.

Tabela 4.1 – Massa, quantidade de nitrometano, tSIE e eficiência das amostras de ^3H medidas no sistema TRICARB 2100

Amostra	Massa (mg)	Nitrometano (μL)	tSIE	Eficiência (%)
1	21,038	10	463 (2)	36,7 (6)
2	29,563	20	369 (1)	30,4 (5)
3	62,793	30	298 (1)	24,8 (4)
4	22,166	40	221 (1)	17,5 (3)
5	28,291	50	169 (1)	11,9 (3)

Na FIG. 4.1, é apresentada a curva da figura de mérito em função da eficiência teórica do ^3H . Na FIG. 4.2 é apresentada a curva universal (fator de mérito *versus* fator indicador de *quenching*). A curva da eficiência teórica do ^{32}P em função do fator de mérito é apresentada na FIG. 4.3.

FIGURA 4.1 – Curva relacionando a figura de mérito com eficiência teórica do ^3H

FIGURA 4.2 – Curva universal mudar abscissa tSIE

FIGURA 4.3 – Curva da eficiência teórica do ^{32}P em função da figura de mérito

A partir de ajustes polinomiais das curvas apresentadas foi possível determinar as eficiências para as amostras de ^{32}P . Na TAB. 4.2 são apresentados: as massas, os fatores indicadores de quenching (tSIE), as eficiências teóricas e atividade de cada amostra de ^{32}P , bem como a atividade média.

TABELA 4.2 – Massa, tSIE, eficiência e atividade das amostras de ^{32}P medidas no sistema TRICARB 2100

Amostra	Massa (mg)	tSIE	$\epsilon_{^{32}\text{P}}$ (%)	Atividade específica (Bq mg ⁻¹)
1	17,026	489 (3)	99,8 (5)	297,30 (56)
2	9,147	375 (1)	99,7 (5)	297,80 (57)
3	11,224	314 (1)	99,7 (5)	296,90 (50)
4	8,119	216 (3)	99,6 (5)	289,20 (54)
5	8,627	160 (3)	99,5 (5)	293,90 (64)
Atividade média				295,02 (56)

4.1.2. Sistema HIDEX 300SL

Na TAB.4.3 são apresentadas as eficiências TDCR e as atividades obtidas pelo método TDCR no sistema HIDEX para amostras com nitro metano. As amostras foram medidas em um ciclo de 600 segundos.

TABELA 4.3 – Eficiência TDCR e atividade de ^{32}P no sistema HIDEX 300SL

Amostra	ϵ TDCR (%)	Atividade específica (Bq mg⁻¹)
1	99,7 (4)	300,80 (16)
2	99,6 (5)	301,60 (21)
3	99,5 (5)	301,10 (19)
4	99,3 (6)	294,80 (22)
5	99,1 (6)	299,40 (22)
Atividade média		299,50 (25)

4.1.3 Sistema $4\pi\beta$

Os resultados da medida no sistema $4\pi\beta$ com respectivas massas são apresentados na TAB. 4.4

TABELA 4.4 – Resultados obtidos para o ^{32}P no sistema $4\pi\beta$

Amostra	Massa (mg)	Atividade específica (cps mg⁻¹)
1	11,989	299,3 (12)
2	12,938	300,4 (12)
3	13,711	298,9 (12)
4	26,410	298,4 (12)
5	29,547	299,4 (13)
6	33,075	299,4 (17)
7	34,123	298,8 (17)
8	34,860	299,7 (17)

Na FIG.4.4 é apresentada a curva de auto absorção para determinação da atividade correspondente à massa zero. Os pontos com as barras de incerteza correspondem aos dados experimentais e a linha contínua à reta ajustada pelo método de mínimos quadrados obtida pelo programa LINFIT, desenvolvido no LMN, que utiliza a metodologia de matriz de covariância para análise das incertezas.

Figura 4.4 – Curva de autoabsorção

Na FIG. 4.5, é apresentado o gráfico dos resíduos relativos em porcentagem, entre os pontos experimentais e a curva ajustada. Como pode ser visto, não há nenhuma tendência com relação ao ajuste realizado.

FIGURA 4.5 – Resíduos relativos entre os pontos experimentais e a curva ajustada

Na TAB.4.5, são apresentados os resultados obtidos para a solução de ^{32}P , medida nos sistemas HIDEX e TRICARB, bem como no sistema $4\pi\beta$. Na TAB. 4.6 são apresentadas as incertezas parciais típicas em porcentagem de cada sistema de medida, com as respectivas correlações (0 não correlacionadas e 1 correlacionadas)

TABELA 4.5 – Resultados obtidos para a solução de ^{32}P

Sistema	Atividade específica (Bq mg ⁻¹)	Desvio Relativo %
HIDEX	300 (2)	0
CIEMAT/NIST	296 (5)	1,3
$4\pi\beta$	300 (2)	-

TABELA 4.6 – Incertezas parciais típicas, em porcentagem, consideradas nos métodos C/N e TDCR e $4\pi\beta$.

Componentes	C/N	TDCR	$4\pi\beta$	Correlação
	%	%	%	
Estatística de contagem	0,60	0,38		0
massa ^{32}P	0,20	0,20	0,20	1
traçador(^3H)	1,6	-		1
Quenching (Q)	0,54	-		0
Eficiência CIEMAT/NIST	0,50	-		0
Eficiência TDCR	-	0,54		0
Correção de decaimento	0,22	0,22	0,22	1
Tempo Morto			0,20	1
Extrapolação auto absorção /incerteza no ajuste			0,42	
Incerteza combinada	1,88	0,72	0,55	

Os resultados obtidos com os três métodos são concordantes dentro da incerteza experimental. O método TDCR, com o sistema HIDEX 300SL, demonstrou ser mais prático, uma vez que não necessita de um padrão para ser aplicado, como no método C/N.

4.2 Padronização do ^{90}Sr - ^{90}Y

4.2.1 Sistema HIDEX 300SL

Na TAB.4.7 são apresentadas as eficiências TDCR e as atividades obtidas pelo método TDCR no sistema HIDEX para amostras com nitrometano e H_2O . As medidas foram realizadas em 3 ciclos de 600 segundos cada, sendo os valores das eficiências e a atividade correspondentes à média dos três ciclos, com o respectivo desvio padrão.

TABELA 4.7 – Resultados obtidos para o ^{90}Sr - ^{90}Y no sistema HIDEX

Amostra	Massa (mg)	ε TDCR (%)	Atividade específica (Bq mg⁻¹)
1	17,976	99,1 (5)	43,2 (2)
2	16,566	99,0 (5)	43,2 (2)
3	22,723	98,9 (5)	43,2 (2)
4	18,634	98,8 (5)	43,3(3)
5	18,120	98,7 (5)	43,3 (3)
6	13,926	98,6 (5)	43,3 (2)
Atividade média			43,21 (6)

4.2.2 Padronização do ^{90}Sr - ^{90}Y pelo método do traçador em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$

Na TAB. 4.8, são apresentados a eficiência beta, massa das fontes e a atividade obtidos para as fontes de ^{60}Co utilizado como traçador, com respectivas incertezas. O fator de correção do esquema de decaimento do ^{60}Co utilizado foi $(0,0038 \pm 0,0038)$.

TABELA 4.8 Resultados obtidos para o ^{60}Co no sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

Massa (mg)	N_c/N_γ (%)	Atividade específica (Bq mg⁻¹)
19,63	87,8 (2)	48,7 (2)
37,64	88,9 (1)	48,8 (1)
21,79	90,7 (1)	48,9 (1)
28,13	89,8 (1)	48,9 (1)
23,61	89,4 (1)	49,0 (1)
17,37	84,2 (2)	48,8 (2)
Média aritmética		48,8 (1)

Na TAB. 4.9 são apresentados os parâmetros de eficiência (N_c/N_γ) e de ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ obtidos para as fontes mistas pelo uso de absorvedores externos de Collodion e alumínio, e a razão $(N_\beta N_\gamma / N_c)$ do ^{90}Sr - ^{90}Y com respectivas incertezas.

TABELA 4.9 – Parâmetros de eficiência, ineficiência e atividade obtidos para fontes de ^{90}Sr - ^{90}Y pelo método do traçador, com as respectivas incertezas

Medida	(N_c/N_γ)	$(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$	$(N_\beta N_\gamma/N_c - N_{otr})$
	%		<i>cps mg⁻¹</i>
1	88,60 (7)	0,1262 (8)	48,16 (31)
2	88,43 (7)	0,1308 (8)	48,11 (31)
3	88,32 (7)	0,1322 (9)	48,04 (31)
4	87,51 (9)	0,1427 (12)	48,19 (31)
5	86,77 (10)	0,1525 (13)	49,17 (32)
6	86,76 (10)	0,1526 (13)	48,16 (31)
6	85,49 (10)	0,1703 (13)	49,01 (32)
7	82,53 (11)	0,2116 (16)	50,65 (33)
8	78,84 (11)	0,2685 (18)	52,12 (34)
9	73,56 (9)	0,3594 (17)	54,98 (37)
10	68,48 (14)	0,4604 (29)	57,98 (38)
11	62,39 (10)	0,6027 (25)	61,92 (41)
12	56,01 (9)	0,7854 (29)	67,28 (44)

Na FIG.4.6 é apresentada a curva de extrapolação para determinação da atividade do emissor beta puro. Os pontos com as barras de incerteza correspondem aos dados experimentais e a linha contínua à reta ajustada pelo método de mínimos quadrados obtida pelo programa LINFIT.

FIGURA 4.6 – Curva de extrapolação de $(N_\beta N_\gamma / N_c - N_{0tr})$ em função de $(1 - N_c/N_\gamma) / (N_c/N_\gamma)$. Os pontos com as barras de incerteza correspondem aos dados experimentais e a linha contínua corresponde ao ajuste.

Na TAB. 4.10 são apresentados os parâmetros do ajuste com matriz de correlação obtida pelo programa LINFIT

TABELA 4.10 – Parâmetros do ajuste da curva de extrapolação

	Parâmetros	Matriz de covariância	
Coefficiente linear	44,18 (27)	7,14E-02	
Coefficiente angular	29,58 (66)	-7,13E-02	4,04E-01

Na FIG. 4.7, é apresentado o gráfico dos resíduos relativos em porcentagem, entre os pontos experimentais e a curva ajustada. Como pode ser visto não há nenhuma tendência com relação ao ajuste realizado.

FIGURA 4.7 – Gráfico de resíduos relativos em porcentagem, entre os pontos experimentais e a curva ajustada, as barras de incerteza são as incertezas experimentais.

4.2. Simulação de Monte Carlo

Os resultados da atividade corrigidos pelo fator de correção fornecido pela curva de extrapolação da simulação Monte Carlo, são apresentados nas TAB. 4.11, com os respectivos valores de ineficiência $(1 - N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ e os valores MC correspondentes às eficiências experimentais na curva de Monte Carlo.

TABELA 4.11 – Resultados da atividade corrigidos pelo fator de correção fornecido pela curva de extrapolação da simulação Monte Carlo, ineficiências experimentais $(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$ e valor correspondente na da curva de Monte Carlo.

Medidas	$(1-N_c/N_\gamma)/N_c/N_\gamma$	Fator de correção do MC	Atividade específica (Bq mg⁻¹)
1	0.12862	1.094 (2)	44.04 (29)
2	0.13084	1.095 (2)	43.93 (28)
3	0.13221	1.096 (2)	43.83 (29)
4	0.14273	1.104 (2)	43.66 (28)
5	0.15249	1.111 (2)	44, 28 (28)
6	0.15262	1.111 (2)	43.74 (29)
7	0.16972	1.123 (2)	43.64 (28)
8	0.21161	1.152 (2)	43,96 (29)
9	0.26847	1.192 (2)	43.73 (29)
10	0.35935	1.255 (3)	43.83 (29)
11	0.46038	1.323 (3)	43.83 (29)
12	0.60271	1.418 (3)	43.68 (29)
13	0.78541	1.538 (3)	43.75 (28)
Média aritmética			43.83 (18)

Na FIG.4.8 é apresentada a curva de extrapolação obtida com o programa ESQUEMA normalizada pela atividade média, com os valores experimentais e respectivas barras de incerteza.

FIGURA 4.8 – Curva de extrapolação obtido pelo programa ESQUEMA. Os pontos com as barras de incerteza correspondem aos pontos experimentais, e a linha tracejada à simulação de Monte Carlo.

Na TAB.4.12, são apresentados os resultados obtidos para a solução de $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$, medidas nos sistemas HIDEX e no sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$.

TABELA 4.12 – Resultados obtidos para a solução de $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$

Sistema	Atividade específica (Bq mg ⁻¹)	Desvio Relativo %
HIDEX	43,2 (4)	1,5
$4\pi\beta-\gamma$	44,2 (4)	-
Monte Carlo	43,84 (5)	0,8

4.3. Análise das incertezas

As incertezas parciais típicas consideradas nos dois métodos são apresentadas na TAB.4.13. A incerteza da medida do método do traçador foi adicionada uma incerteza relativa à diferença na forma do de espectro beta puro, valor estimado em 0,6% igual ao valor da incerteza no ajuste de mínimos quadrados.

TABELA 4.13 – Incertezas parciais típicas, em porcentagem, consideradas nos métodos TDCR e traçador ($u=1$)

Componentes	TDCR	$4\pi\beta-\gamma$ / Traçador
Estatística de contagem	0,38	-
Massa beta puro	0,20	0,20
Massa traçador		0,20
Atividade traçador	-	0,22
Tempo Morto	0,50	0,10
Tempo de resolução	-	0,10
Eficiência TDCR	0,54	-
Decaimento traçador		0,16
Ajuste curva de extrapolação	-	0,60
Diferença na forma do espectro beta puro - estimado		0,60
Incerteza total	0.85	0,94

Os resultados obtidos com o sistema de cintilação estão de acordo com os resultados obtidos com a simulação de Monte Carlo, dentro da incerteza experimental; o resultado do $4\pi\beta-\gamma$ também concorda com o resultado da simulação de Monte Carlo, dentro da incerteza experimental.

CONCLUSÃO

A medida da atividade específica da solução de ^{32}P foi realizada com sucesso por meio dos três métodos distintos apresentados e os resultados obtidos estão em acordo dentro das incertezas experimentais.

O método TDCR mostrou-se mais conveniente para a padronização do ^{32}P comparado com o método CIEMAT/NIST, uma vez que ele não requer o uso de uma solução padrão, bem como da quantificação do fator de *quenching*.

A medida da atividade específica da solução de ^{90}Sr - ^{90}Y foi feita no sistema de cintilação líquida HIDEX, tendo sido analisadas seis amostras com diferentes níveis de *quenching*.

A medida no sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$, pela técnica do traçador empregando como emissor beta-gama o ^{60}Co com esquema de decaimento simples, foi feita variando-se a eficiência por meio de absorvedores externos colocados sobre e sob as fontes radioativas. A atividade foi determinada pela técnica de extrapolação da curva de eficiência, tendo sido ajustado um polinômio de grau 1 pelo método de mínimos quadrados. A utilização do ^{60}Co como traçador foi adequada, demonstrando a validade de sua utilização.

Na padronização do ^{90}Sr - ^{90}Y foi também utilizado o código ESQUEMA para simulação da curva de extrapolação da eficiência que emprega a técnica de Monte Carlo. Os resultados obtidos por essa simulação foram comparados com os resultados experimentais dos dois sistemas de medida, apresentando concordância dentro incertezas experimentais.

Como trabalho futuro, sugere-se a padronização do ^{32}P pelo método do traçador empregando como emissor beta-gama o ^{24}Na , que tem uma energia beta máxima de 1392,72 keV próxima da energia máxima do ^{32}P , que é de 1710,66 keV

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. MOURA, L. P. **Método de coincidências generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos – aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna da transição de 279 keV do ^{203}Tl** . 1969. 84 p. (Tese de Doutorado apresentada à Universidade de Campinas)
2. MALLER, J.W., RYTZ, A. **Report on the International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by Means of ^{60}Co** . Bureau International des Poids et Mesures (1967)
3. ANNUNZIATA M. L. **Handbook of radioactivity analysis**. 2nd ed. Elsevier, 2003
4. HINES, G., SPENCER, S., MARKERT, J., SHEN, S., BENDER, L. **Confirmation of phosphorus-32 administration for malignant brain tumor treatment using bremsstrahlung imaging with a gamma camera**. The Journal of Nuclear Medicine, v. 48 (Supplement 2), p.447, 2007
5. PATTILLO, R. A., COLLIER, B. D., ABDEL-DAYEM, H., OZKER, K., WILSON, C., RUCKERT, A. C. F., HAMILTON, K. **Phosphorus-32-chromic phosphate for ovarian cancer**. Journal of Nuclear Medicine, v. 36, p. 29-36, 1995
6. AHMED, S. N. **Physics & engineering of radiation detection**. Academic Press, 2007
7. TSOULFANIDIS, N. **Measurement and detection of radioation**. 2nd ed. Taylor & Francis, 1995
8. RUTHERFORD, E. **Radio-activity**. London: C. J. Clay & Sons, 1904.
9. CURIE, E. **Madame Curie**. William Heinemann, 1947
10. CURIE, M. S. **Radio-active substances**. 1904 94 p. (Tese de doutorado apresentada à Faculdade de Ciências de Paris)
11. RUTHERFORD, E. **The scattering of α and β particles by matter and the structure of the atom**, Philosophical Magazine Series 6, 21: 125, 669 — 688
12. EISBERG, R., RESNICK, R. **Física quântica**. Elsevier, Editora Campus. 1979
13. **Diagrama de radionuclídeos**. Disponível em < http://www.meta-synthesis.com/webbook/33_segre/seg_2.png>. Acessado em 30/dez
14. TIPLER, P. A., LLEWELLYN, R. A. **Física moderna**. LTC, 6ª ed, 2012
15. EVANS, R. D., DAVISSON, C. M. **The atomic nucleus**. New York, McGraw-Hill, 1955
16. RUTHERFORD, E., SODDY, F. **The cause and nature of radioactivity**. *Philosophical Magazine* 4, 370-96 (1902) [as reprinted in *The Collected Papers of Lord Rutherford of Nelson*, Vol. 1, pp. 472-94 (London: Allen and Unwin, Ltd., 1962)]
17. JUDGE S. M., et al. **100 years of radionuclide metrology**. Applied Radiation and Isotopes. P. 1351 – 1359, 2013

18. KRANE, K, S. **Introductory nuclear physics**. John Wiley & Sons, 1988
19. KNOLL, G. **Radiation detection and measurement**. 3rd ed. New York: Willey, 1999
20. KUZNETSOVA, M. **Medida absoluta da atividade de ^{14}C pelos métodos CIEMAT/NIST, TDCR e em sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$** . 2016. 70p (Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo)
21. GRAU MALONDA A. AND GARCIA-TORANO E. **Evaluation of counting efficiency in a liquid Scintillation counting of pure β -Ray emitters**, Int. J. Appl. Radat. Isot. Vol 33, p 249-253, 1982.
22. CIEMAT/NIST – **Descrição do método**. Disponível em < http://www.nucleide.org/ICRM_LSCWG/icrmdescription.htm > Acessado em 30/dez.
23. GÜNTHER E. **CN2001A Code**, PTB 6.11, Bundesallee 100, D-38 116 Braunschweig, Germany 2001.
24. BRODA, R. **A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardization radionuclides**. Applied Radiation and Isotopes 58 (2003) 585-594.
25. KOSSERT, K., et al. **Uncertainty determination for activity measurements by means of the TDCR method and the CIEMAT/NIST efficiency tracing technique**. 2015. Metrologia, v. 5, n.3
26. WANKE, C. KOSSERT, K. NÄHLE, O. J. **Investigation on TDCR measurements with the HIDEX 300 SL using a free parameter model**. Applied Radiation and Isotopes, 2012
27. DA CRUZ P. A. L., IWAHARA, A. BERNARDES, E. M.O., DA SILVA C. J. **The absolute standardization of ^{32}P and ^{204}Tl at LNMRI**. 2004. Applied Radiation and Isotopes 60: 415–418.
28. BAERG, A. P., MEGHIR, S., BOWES, G. C. **Extensions of the efficiency tracing method for the calibration of the pure beta-emitters**. International Journal of Applied Radiation and Isotopes, 1964 v. 15 p 279-287
29. MOREIRA, D. S. **Medida absoluta da taxa de desintegração e da probabilidade de emissão gama do ^{42}K** . 2000. 96 p. (Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo)
30. CAMPION, P. J. **The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using igh efficiency detectors**. Int. J. Appl. Radiat. Iso, 4, p. 232-248, 1959
31. BAERG, A. P. **Absolute measurement of radioactivity**. Metrologia 3 (4), p.105-108, 1967

32. TAKEDA, M. N. **Aplicação do método de Monte Carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexos em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$** . (Tese de Doutorado apresentada à Universidade de São Paulo)
33. ORNL. **Monte Carlo n-particle transport code system, MCNP5**. RSICC – Computer Code Collection, Oak Ridge National Laboratory, 2006
34. ^3H LNHB **Recommend Data**. Disponível em <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>
35. ^{32}P - LNHB **Recommend Data**. Disponível em <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>. Acessado em 30/dez
36. ^{60}Co - LNHB **Recommend Data**. Disponível em <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>. Acessado em 30/dez
37. ^{90}Sr - LNHB **Recommend Data**. Disponível em <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>. Acessado em 30/dez
38. ^{90}Y - LNHB **Recommend Data**. Disponível em <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>. Acessado em 30/dez
39. NASCIMENTO, T. S. **Padronização de Y-90 pelo método CIEMAT/NIST em sistema de cintilação líquida e pelo método do traçador em sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$** . 2014. 72 p. (Dissertação de Mestrado apresentada à Universidade de São Paulo)
40. THOMSON, L. **Use and preparation of quenching curves in liquid scintillation counting**. Liquid Scintillation Counting Application 2001. Note LSC-007 Packard Bio Science
41. MOREIRA, D. S. **Padronização dos radionuclídeos multi-emissores gama $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e ^{72}Ga e determinação de suas intensidades gama por decaimento**. 2005. 116 p. (Tese de Doutorado apresentada à Universidade de São Paulo)