INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DE Tc-99m E
In-111 EM SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS**

ANDRÉIA BARRETO DE BRITO

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

Orientadora:

Dra: Marina Fallone Koskinas

**São Paulo
2011**

**À minha mãe Luciana Barreto de Brito,
ao meu pai João de Brito Ferreira e
aos meus irmãos Jefferson e Lucas**

DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DESINTEGRAÇÃO DE ^{99m}Tc E ^{111}In EM SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS

ANDRÉIA BARRETO DE BRITO

RESUMO

Este trabalho apresenta os métodos de padronização de ^{111}In e ^{99m}Tc , em sistemas de coincidências $4\pi\beta-\gamma$. O ^{111}In foi produzido em ciclotron pela reação $^{111}\text{Cd}(p, n)^{111}\text{In}$; decai com uma meia vida de 2,8 dias pelo processo de captura eletrônica populando os níveis excitados do ^{111}Cd , emitindo raios gama de 171 keV e 245 keV. O ^{99m}Tc decai com uma meia vida de 6,007 h por transição isomérica do decaimento radioativo do ^{99}Mo . A padronização do ^{111}In foi feita no sistema $4\pi\beta-\gamma$ constituído de um detector proporcional em geometria 4π acoplado a dois cristais cintiladores de NaI(Tl) com eletrônica convencional. A radiação gama selecionada para medida em coincidência foi de (171 + 245) keV. A escolha da janela gama foi baseada na análise da previsão da curva de extrapolação obtida na simulação de Monte Carlo. A padronização do ^{99m}Tc foi feita num sistema $4\pi\beta-\gamma$ usando um contador proporcional de janela fina acoplado a um cristal de cintilação NaI (Tl). A eficiência beta foi variada por discriminação eletrônica, usando sistema de coincidências por software (SCS). A padronização do ^{99m}Tc foi feita pela seleção de dois intervalos gama, um no pico de absorção total de 140 keV e outro no pico de absorção total dos raios X de 20 keV. O resultado da atividade experimental de duas soluções de ^{111}In concorda com o resultado obtido pela simulação de Monte Carlo. As atividades experimentais do ^{99m}Tc para os dois intervalos gama selecionados estão de acordo dentro da incerteza experimental, indicando que a metodologia adotada é adequada.

DISINTEGRATION RATE OF Tc -99m AND In -111 RADIOACTIVE SOLUTIONS IN COINCIDENCE SYSTEMS

ANDRÉIA BARRETO DE BRITO

ABSTRACT

The ^{111}In and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ standardization in a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ coincidence system is described. The ^{111}In was produced by the reaction of ^{111}Cd (p, n) ^{111}In in the cyclotron. The ^{111}In decays with a half life of 2.8 days by electron capture process, populating the excited levels of ^{111}Cd , emitting two main gamma rays with energies of 171 keV and 245 keV. The $^{99\text{m}}\text{Tc}$ decay with a half life of 6.007 h for isomeric transition, from the radioactive decay of ^{99}Mo . ^{111}In standardization was carried out in a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ system, consisted of a gas flow proportional counter with 4π geometry coupled to a pair of NaI(Tl) scintillation counter with conventional electronics. The gamma window was set comprising the (171 keV + 245 keV) total absorption energy peaks. The choice of the window was based on the analysis of the extrapolation curves prediction, obtained by Monte Carlo simulation. The $^{99\text{m}}\text{Tc}$ standardization has been accomplished by the $4\pi\beta\text{--}\gamma$ coincidence method using a thin window proportional counter in a 4π geometry coupled to a single NaI(Tl) scintillation counter. The beta efficiency was varied by electronic discrimination using a software coincidence counting system (SCS). Two windows were selected for the gamma channel: one at 140 keV gamma ray and the other at 20 keV X ray total absorption peaks. The result of the experimental activity of ^{111}In two solutions agree with the results obtained by Monte Carlo simulation. The experimental activities of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ for the two gamma windows are in agreement within the experimental uncertainty, indicating that the adopted methodology is adequate.

Agradecimentos

A Deus antes de qualquer coisa, pois sem ele eu nada seria.

À Dra. Marina Fallone Koskinas orientadora deste trabalho, a paciência e a bondade realmente é um dom, agradeço pela atenção pelas valiosas instruções, e os ensinamentos não só do trabalho em si, mas ensinamentos da vida.

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pelo suporte técnico e pela assistência no meu trabalho.

À Msc. Ione M. Yamazaki por muitas vezes me ajudar no laboratório, com a parte de metalização dos filmes.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade de realização do presente trabalho.

Ao CNPq órgão do governo federal, pela bolsa concedida para este estudo.

Aos meus amigos do IPEN, tanto os que fizeram disciplinas comigo quanto os que estiveram presentes aqui nos cafés e no dia a dia deste convívio no CRPq ao longo destes três anos.

Aos meus amigos do lado de fora do IPEN, que eu não poderia esquecer, pois sempre me incentivaram e me deram ouvidos na hora em que precisei.

Ao Rodrigo Dias Vilela, com paciência sempre me ajudando e me apoiando.

À minha família, pois tudo que faço é pensando neles, me deram base e ensinamentos que me fizeram chegar até aqui, e sempre me apoiaram nos meus estudos.

**“Apenas quando somos instruídos pela realidade
é que podemos mudá- la.”**

“Bertolt Brecht”

SUMÁRIO

INTRODUÇÃO	1
OBJETIVOS.....	5
Objetivos Específicos.....	5
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	6
1.1. Desintegração Beta	6
1.2. Captura eletrônica.....	7
1.3. Decaimento Gama	7
1.4 Transição Isomérica	9
1.5 Método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$	10
1.5.1 Técnica da extrapolação linear da eficiência	11
1.6 Método de Monte Carlo	14
2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta-\gamma$.....	19
2.1 Arranjo experimental dos sistemas de coincidências 4π (PC) NaI(Tl).....	19
2.1.1 Detector Proporcional com geometria 4π	20
2.1.2 Cristal Cintilador NaI(Tl).....	22
2.2 Sistema Eletrônico para as medidas do ^{111}In	23
2.3 Preparações das fontes radioativas de ^{111}In	25
2.4 Análise de Dados para o ^{111}In	27
2.5 Correções aplicadas as medidas do sistema 4π (PC) – NaI (Tl).....	27
2.5.1 Radiação de fundo	28
2.5.2 Decaimento radioativo.....	28
2.5.3 Tempo morto	29
2.5.4 Coincidências acidentais.	29
2.6 Sistema Eletrônico para as medidas do $^{99\text{m}}\text{Tc}$	30
2.7 Preparações das fontes radioativas para $^{99\text{m}}\text{Tc}$	32
2.8 Sistema de análise para $^{99\text{m}}\text{Tc}$	33
3. PADRONIZAÇÃO DO ^{111}In.....	34
3.1 Equações para o sistema de coincidências	37
3.2 Aplicação do método de Monte Carlo	37
4. PADRONIZAÇÃO DO $^{99\text{m}}\text{Tc}$.....	40
4.1 Equações para o sistema de coincidências	43
4.1.1 Equações para medida do $^{99\text{m}}\text{Tc}$	43
4.1.2 Equações para medida dos elétrons de conversão interna de 2keV juntamente com os elétrons de maior energia em coincidência com gama de 140 keV.....	45

4.1.3 Equações para medida dos elétrons de conversão (119 - 140) keV em coincidência com os Raios X de (18 - 21) keV	46
4.2 Aplicação do método de Monte Carlo, para o ^{99m}Tc	47
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES	50
5.1 Resultados da Padronização do ^{111}In	50
5.2 Resultados da padronização do ^{99m}Tc	60
6. CONCLUSÕES	70
REFERÊNCIAS	72

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1 Geometria do sistema II considerada na simulação obtida por meio de código VISED	17
Figura 1.2 Geometria do sistema I considerada na simulação obtida por meio do código VISED	18
Figura 2.1 a) Sistema II, b) Sistema I	20
Figura 2.2 a) detector proporcional sistema II aberto onde é possível visualizar os anodos b)detector proporcional sistema I onde pode ser visualizada a janela fina 0,1mm	21
Figura 2.3 Detector NaI(Tl) e lingüeta onde são colocadas as fontes	23
Figura 2.4 Sistema eletrônico 4 π (PC) – NaI (TI)	24
Figura 2.5 (a) Filmes para a produção das fontes, (b) filmes absorvedores	26
Figura 2.6 Sistema Eletrônico por software (SCS)	31
Figura 2.7 (a) Placa PCI 6132, (b) Painel de conexão BNC 2110	32
Figura 2.8 Fontes radioativas de ^{99m}Tc	33
Figura 3.1 Esquema do decaimento do ^{111}In . Todas as energias estão em keV	35
Figura 3.2 Espectro experimental NaI(Tl) na cor preta em comparação com o espectro previsto pela simulação de Monte Carlo, que está em cinza claro. A janela do gama usada é indicada pelas setas.	38

Figura 3.3 Curva de extrapolação para as diferentes janelas do gama.	39
Figura 4.1 Esquema de decaimento ^{99m}Tc	41
Figura 4.2 Espectro experimental NaI(Tl) na cor preta em comparação com o espectro previsto pela simulação de Monte Carlo, que está em vermelho (^{99m}Tc).	48
Figura 5.1 Curva de extrapolação para os valores experimentais da solução 1, os pontos correspondem as medidas experimentais e a reta corresponde ao ajuste.....	53
Figura 5.2 Curva de extrapolação para os valores experimentais da solução 2, os pontos correspondem as medidas experimentais e a reta corresponde ao ajuste.....	53
Figura 5.3 Curva de extrapolação, a linha sólida refere se ao cálculo de Monte Carlo, os triângulos correspondem às fontes da solução 1 e os quadrados às fontes da solução 2 com as respectivas incertezas experimentais	58
Figura 5.4 Espectro dos elétrons de 2keV e (119 -140) keV obtidos no detector proporcional fornecido pela placa PCI 6132.....	60
Figura 5.5 Espectro do gama de 140 keV e dos raios x de (18 – 21) keV que são obtidos no detector de NaI(Tl) fornecido pela placa PCI 6132.....	61
Figura 5.6 Curva de extrapolação da fonte de ^{99m}Tc correspondente ao pico de absorção total de 140 keV e todo o espectro no detector 4π . Em vermelho o cálculo teórico feito por monte Carlo em branco o experimental. As barras de erro são muito pequenas para serem vistas cerca de (0,5% o erro estatístico)	63
Figura 5.7 Curvas de extrapolação obtidas para ^{99m}Tc , o canal do gama em (18-21) keV pico de absorção total e contando todo o espectro de detector 4π acima de 2,1 keV. As marcas brancas são pontos experimentais e as marcas verdes são o Monte Carlo	64

Figura 5.8 Espectro do detector 4π em vermelho corresponde a uma fonte de ^{99m}Tc sem absorvedores adicionais, em preto a mesma fonte porém com 3 absorvedores adicionados à fonte, correspondendo a uma espessura de $50\text{ }\mu\text{g.cm}^{-2}$68

LISTA DE TABELAS

Tabela 3.1 Radiações do decaimento do ^{111}In , energias e incertezas	36
Tabela 4.1 Radiações do decaimento do $^{99\text{m}}\text{Tc}$, energias e incertezas.....	42
Tabela 5.1 Valores da eficiência para a solução 1 e atividades experimentais corrigidas para impureza obtidos para a fonte de ^{111}In juntamente com as incertezas consideradas (em %) e respectivas correlações.	51
Tabela 5.2 Valores de eficiência para solução 1 e atividades experimentais corrigidas para impureza obtidos para a fonte de ^{111}In juntamente com as incertezas consideradas (em %) e respectivas correlações.	52
Tabela 5.3 Valores para a solução 1 da atividade por Monte Carlo e as respectivas incertezas.....	55
Tabela 5.4 Valores para solução 2 da atividade por Monte Carlo e as respectivas incertezas	56
Tabela 5.5 Valores dos parâmetros obtidos pelo ajuste linear quando comparada com a simulação de Monte Carlo para as duas soluções medidas.	57
Tabela 5.6 Componentes de incerteza típicos em % devida a concentração da atividade.	59
Tabela 5.7 Parâmetros da extrapolação obtidos para os dois métodos descritos	65

Tabela 5.8 Comparação dos resultados obtidos a partir das atividades e incertezas utilizando o método 1 e o método 2.66

Tabela 5.9 Incertezas parciais envolvidas na determinação parcial da atividade (em porcentagem, ao nível de confiança de 68%) Tipos A e B são erros estatísticos e sistemáticos respectivamente69

INTRODUÇÃO

O interesse nos parâmetros nucleares iniciou no século passado no domínio da física visando melhorar a compreensão dos fenômenos que ocorrem no núcleo.

Diversos estudos foram realizados para a obtenção de informações cada vez mais precisas acerca dos parâmetros envolvidos nos esquemas de desintegração dos radionuclídeos, dentre os quais destacamos a energia de emissão, a meia vida, as probabilidades de emissão das partículas, secções de choque de interações nucleares, etc.

Estes parâmetros são utilizados para determinação da atividade dos radionuclídeos utilizados na medicina, na indústria, no meio ambiente, na proteção radiológica, etc.

Nestas aplicações os sistemas de medida usados são em sua maioria sistemas de medida secundários ou terciários que necessitam, além do conhecimento dos parâmetros nucleares dos radionuclídeos, serem calibrados com boa exatidão. Para esta calibração são usadas fontes radioativas denominadas fontes padrão, cuja atividade é determinada em sistemas primários, os quais não dependem do conhecimento prévio dos parâmetros nucleares.

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN CNEN/SP), fundado em 1964 tem desenvolvido diversos sistemas primários e metodologias de medida de atividade de radionuclídeos ^[1].

Atualmente a ênfase tem sido dada ao desenvolvimento de métodos de padronização de radionuclídeos produzidos no IPEN para uso em medicina nuclear, visando capacitar o laboratório na padronização destes radionuclídeos, entre eles ¹⁸⁶Re ^[2], ¹⁵³Sm ^[3], ⁴⁵Ca ^[4], ⁶⁷Ga ^[5] e assim fornecer fontes radioativas padrões usadas na calibração dos diversos sistemas de medidas, tais como: câmaras de ionização, detectores de barreira de superfície, espectrômetros de HPGe e cintiladores de NaI (TI).

A confiabilidade dessas padronizações tem sido verificada por meio de várias comparações internacionais patrocinadas pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures) da França ^[6] cujos resultados comprovam o excelente grau de confiabilidade atingido pelo LMN.

O sistema mais utilizado no LMN é o sistema de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$, que emprega um contador proporcional (PC) em geometria 4π , operado a gás fluente ou pressurizado, associado a cintiladores de NaI (TI) ou detectores de germânio hiper puro (HPGe) ^[7].

O método de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ é um método primário usado para determinação da atividade de radionuclídeo, este é um dos métodos mais empregados em metrologia nuclear por possibilitar a determinação da atividade com alta precisão, não dependendo dos parâmetros do esquema de decaimento do radionuclídeo em estudo, assim como do conhecimento prévio das eficiências de detecção.

Neste trabalho, os radionuclídeos selecionados para serem padronizados foram o ^{111}In e o $^{99\text{m}}\text{Tc}$, sendo os dois utilizados na medicina nuclear.

O ^{111}In é utilizado principalmente na cintilografia de tumores neuroendócrinos e em estudos de perfusão em cardiologia, neurologia, oncologia, marcação de leucócitos, estômago, infecções e hemorragias internas [8].

O $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é obtido do decaimento radioativo do ^{99}Mo ; sendo separado do ^{99}Mo quando eluído com solução fisiológica ao passar pela coluna de alumina, constituindo o gerador.

O $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é um dos radionuclídeos mais utilizados em medicina nuclear, pode ligar-se a diferentes substratos originando radiofármacos com afinidade por diferentes órgãos ou receptores no organismo, permitindo boa visualização do cérebro, glândulas salivares, tireóide e outros órgãos e tecidos, possibilitando os diagnósticos de cânceres, lesões e obstruções por coágulos sanguíneos. Também é utilizado em cintilografia para o diagnóstico de doenças, por avaliar o comportamento fisiológico de estruturas sanguíneas [9].

Nesta dissertação são apresentados: no capítulo 1 os fundamentos teóricos, descrevendo os principais tipos de desintegrações radioativas, o método de coincidências com ênfase na técnica da extrapolação linear e o método de simulação pela técnica de Monte Carlo aplicado ao sistema de coincidências.

No capítulo 2 são descritos: a padronização dos radionuclídeos em sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$, os arranjos experimentais, os sistemas eletrônicos e a preparação das fontes.

O capítulo 3 apresenta a padronização do ^{111}In e a aplicação do método de Monte Carlo.

No capítulo 4 é apresentada a padronização do ^{99m}Tc em sistema de coincidência por software, e a aplicação pelo método de Monte Carlo.

Os resultados e discussões são apresentados no capítulo 5 e o capítulo 6 apresenta as conclusões do presente trabalho e indica os possíveis trabalhos futuros.

OBJETIVOS

O objetivo desse trabalho foi desenvolver os métodos de padronização do ^{111}In e do $^{99\text{m}}\text{Tc}$ em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$.

Objetivos Específicos

Padronização do ^{111}In no sistema eletrônico TAC (Time to Amplitude Converter) desenvolvido no LMN e aplicação do programa Esquema, método de simulação de Monte Carlo, para comparação com os valores experimentais.

Padronização do $^{99\text{m}}\text{Tc}$ realizada num sistema de coincidência por software (SCS), e utilizando o programa Esq Pos4 ^[10] pelo método de simulação de Monte Carlo.

1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

A radiação é um tipo de energia que pode propagar-se por meio de partículas ou por meio de ondas eletromagnéticas ^[11].

Quando o núcleo de um determinado nuclídeo se encontrar numa situação de instabilidade, seja por ter um excesso de prótons ou de nêutrons ele tenderá a transformar-se em outro nuclídeo mais estável.

A desintegração radioativa ou decaimento radioativo é a emissão de energia em forma de radiação.

A seguir serão descritos os processos de desintegração radioativa relacionada a este trabalho.

1.1 Desintegração Beta

Existem duas formas de desintegração beta, β^- e β^+ .

A desintegração beta (β) são elétrons de alta energia ou pósitrons emitidos de núcleos atômicos num processo conhecido como decaimento beta ou desintegração beta.

Na desintegração β^- , um nêutron é convertido num próton, com emissão de um elétron e de um antineutrino.

Na desintegração β^+ , um próton é convertido num nêutron, com a emissão de um pósitron, e de um neutrino.

1.2 Captura eletrônica

Quando um núcleo de um átomo captura um elétron da camada K seu número atômico diminui de uma unidade e seu número de massa permanece constante, originando a emissão de raios X e elétrons Auger.

1.3 Decaimento Gama

Um núcleo que sofreu decaimento alfa, beta ou uma fissão espontânea, estará bastante energizado e, portanto, instável, eliminando a energia restante na forma de um pulso eletromagnético conhecido como raio gama^[12,13]. A energia dos raios gama será bem definida dependendo somente dos valores inicial e final da energia de transição, conforme a equação 4.

$$E_{\gamma} = E_i - E_f = h\nu \quad (4)$$

Onde:

h = constante de Planck = $6,6252 \cdot 10^{-34}$ J.s,

ν = frequência da radiação.

- **Conversão interna**

A emissão de elétrons de conversão interna compete com a emissão de raios gama. Esta emissão consiste na transferência de excitação nuclear para elétrons das primeiras camadas, por meio de interação colombiana, arrancando-os de seus orbitais com a energia dada pela diferença entre a energia de excitação E_{Ex} do átomo e a energia de ligação do elétron à eletrosfera E_B ^[14].

$$E_e = E_{\text{Ex}} - E_B \quad (5)$$

- **Elétrons Auger**

Este evento é muito semelhante ao processo de conversão interna, por meio de algum processo anterior (como na captura eletrônica, por exemplo) uma vacância é criada em uma das camadas eletrônicas, esta vacância será preenchida por um dos elétrons que se encontram nas camadas mais externas.

A diferença de energia entre as camadas é liberada normalmente na forma de um fóton dando origem aos raios X característicos, porém, em alguns casos, esta diferença pode ser transmitida diretamente para um elétron de uma das camadas fazendo com que o elétron seja ejetado do átomo com energia igual à diferença entre a energia de transição entre as camadas e a energia de ligação do elétron.

• Raios X

Os raios X são radiações eletromagnéticas, como a luz, mas de um comprimento de onda muito menor, estas radiações são emitidas em transições dos elétrons atômicos entre diferentes estados dos átomos, essas emissões irão acontecer quando os elétrons mais externos preencherem as vacâncias deixadas nas camadas mais internas.

As energias características correspondem a cada transição que será a energia final menos à energia inicial, ou seja, quando a vacância for na camada K, se dará à emissão dos fótons XK, quando for na camada L se dará à emissão de fótons XL e assim sucessivamente até as outras camadas.

1.4 Transição Isomérica

Transição isomérica ou metaestável é uma transição eletromagnética que tem uma meia vida muito longa (maior que 0,1 seg). Neste caso dizemos que o núcleo está metaestável, indicando este estado pela letra m ^[15]. Um bom exemplo desse fenômeno é o ^{99m}Tc, formado pelo decaimento beta do ⁹⁹Mo.

(6)

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

O método de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ é um método primário usado para determinação da atividade de radionuclídeos. É um dos métodos mais empregados em metrologia nuclear, possibilitando a determinação da atividade com boa exatidão. Por ser um método primário não depende dos parâmetros do esquema de decaimento do radionuclídeo em estudo e não depende do conhecimento prévio das eficiências de detecção.

Este método, desenvolvido nas décadas de 60 e 70, por Baerg^[16] e Campion^[17], continua atual, sendo, no entanto, otimizado com o desenvolvimento da eletrônica digital e da informática. Pode ser aplicado tanto a emissores beta-gama, alfa-gama como para emissores de raios X, e elétrons Auger-gama.

Para um radionuclídeo ideal em que há emissão de uma partícula beta seguida de um único gama, as equações que regem o método podem ser reescritas como:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (7)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (8)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (9)$$

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_0 será a taxa de desintegração da fonte e ε_{β} e ε_{γ} serão as eficiências dos detectores beta (β) e gama (γ), respectivamente.

Pela combinação das equações 7, 8 e 9 se obtém a equação 10 e por conseguinte o valor de N_0 , que é a atividade.

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (10)$$

1.5.1 Técnica da extrapolação linear da eficiência

Para um caso prático em que o radionuclídeo decai por β - γ e apresenta um esquema de desintegração complexo, com n ramos beta e gama, as equações 7, 8 e 9 são alteradas e podem ser reescritas pelas as equações 11, 12 e 13. A equação 10 passa a ser representada pela equação 14.

$$N_{\beta} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha_r \varepsilon_{ecr} + \varepsilon_{\beta \gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (11)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (12)$$

$$N_c = N_0 \sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right] \quad (13)$$

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \frac{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \left[\sum_{r=1}^n a_r \varepsilon'_{\gamma r} \right]}{\sum_{r=1}^n a_r \left[\varepsilon_{\beta r} \varepsilon'_{\gamma r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \varepsilon_{cr} \right]} \quad (14)$$

Com $\varepsilon'_{\gamma r} = \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r}$,

Onde:

- a_r abundância do r ésimo grupo beta,
- $\varepsilon_{\beta r}$ eficiência para o r ésimo grupo beta,
- $\varepsilon'_{\gamma r}$ eficiência para o gama correspondente ao r ésimo grupo beta,
- α_r coeficiente de conversão interna total
- ε_{cr} eficiência para contagens de coincidência gama gama,
- ε_{ce} eficiência do detector beta para elétrons de conversão,
- $\varepsilon_{\beta \gamma}$ eficiência do detector beta para a radiação gama.

A determinação de N_0 na equação 14 depende das eficiências de detecção do detector beta e dos coeficientes de conversão interna. Sendo necessária a determinação destas eficiências e dos parâmetros do esquema de decaimento.

Para contornar este problema foi desenvolvida por Baerg e Campion ^[18] a técnica de extrapolação da eficiência.

Esta técnica relaciona o parâmetro da eficiência beta que pode ser escrito como (N_c / N_γ) com as contagens do detector beta por uma função F de maneira que $N_\beta \rightarrow N_o$ quando $N_c / N_\gamma \rightarrow 1$.

Assim temos:

$$N_{\beta} = N_0 \cdot F \left(\frac{N_c}{N_{\gamma}} \right) \quad (15)$$

Onde F é a função que relaciona o N_{β} com o parâmetro N_c / N_{γ} e tenderá a 1 quando N_c / N_{γ} tender a 1.

Para casos em que os radionuclídeos possuírem vários ramos β , para que a equação 15 seja válida é importante que a eficiências dos ramos β sejam escritas como em função de uma única eficiência.

Podemos reescrever a equação 15 de modo mais conveniente para sua solução gráfica ou analítica usando a equação 16.

$$\left(\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} \right) = N_0 G \left(\frac{1 - \frac{N_c}{N_{\gamma}}}{\frac{N_c}{N_{\gamma}}} \right) \quad (16)$$

A razão $\left(\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} \right)$ tenderá a N_0 quando G tender a 1, desde que $\left(\frac{1 - \frac{N_c}{N_{\gamma}}}{\frac{N_c}{N_{\gamma}}} \right)$

tenda a zero. O termo $\left(\frac{1 - \frac{N_c}{N_{\gamma}}}{\frac{N_c}{N_{\gamma}}} \right)$ é denominado parâmetro de ineficiência.

Determina-se desse modo a taxa de desintegração N_0 a partir do gráfico de $N_{\beta} N_{\gamma} / N_c$ versus $(1 - N_c / N_{\gamma}) / N_c / N_{\gamma}$, de modo a determinar a função G que

relaciona $N_{\beta} N_{\gamma} / N_c$ com $\left(\frac{1 - \frac{N_c}{N_{\gamma}}}{\frac{N_c}{N_{\gamma}}} \right)$.

O valor extrapolado é obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais.

A variação da eficiência pode ser obtida pelo uso de absorvedores externos, por auto absorção na fonte, por discriminação eletrônica, ou qualquer outro método que possibilite sua variação.

1.6 Método de Monte Carlo

Monte Carlo é um método estatístico criado em 1940, pelos pesquisadores S. Ulam e J. Von Neumann em homenagem a atividade mais popular de Monte Carlo, os jogos ^[19].

O método de Monte Carlo é um método numérico que permite resolver muitos problemas das ciências em geral, como na física, matemática e nas áreas da economia no processo de análise de risco, por meio de simulações de processos aleatórios ^[20].

Uma simulação pode envolver mais de 10.000.000 avaliações do modelo estudado, uma tarefa complicada que antes só poderia ser realizada por computadores avançados.

Neste trabalho para se verificar o comportamento da curva de extrapolação da atividade versus o parâmetro de ineficiência dos radionuclídeos, foram feitas algumas simulações utilizando este método.

Para a simulação das curvas de extrapolação foi utilizado o programa ESQUEMA ^[20] desenvolvido no LMN, o qual simula o comportamento da radiação em estudo considerando o sistema de detecção; onde são introduzidas todas as informações necessárias, como o esquema de desintegração e a geometria do sistema $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(TI)}$. O código utilizado para o transporte da radiação na simulação é o MCNP4X (Monte Carlo N Particle Transport Code System) ^[21].

A estrutura do programa **ESQUEMA** é constituída de: tabelas fornecidas pelo MCNP4X referentes ao transporte da radiação, tabelas de eficiência beta e gama, arquivos de entrada e arquivos de saída.

Os detalhes da estrutura do programa estão descritos por Takeda,^[21]. Neste trabalho apenas citaremos os arquivos de interesse ao usuário final para que possa utilizar o programa de simulação.

Arquivos de entrada: esquema.dat, constant.dat, npicos.dat., tabela de eficiência beta total. (β), tabela de eficiência gama (γ).

Arquivos de Saída: MCBG. out, NBGC. out.

Nos arquivos de entrada encontram-se as informações dos radionuclídeos como número atômico do elemento, números de níveis de energia do esquema de decaimento a serem populados, energia de desintegração, intensidades normalizadas dos ramos β , intensidades normalizadas nos ramos γ , matriz dos coeficientes de conversão interna total e da camada K. Todas estas informações devem constar no arquivo esquema.dat.

A caracterização da medida que se deseja simular é especificada no arquivo Constant.dat, no qual constarão informações como: números de canais do multicanal; números de histórias (eventos); espessura mínima e máxima dos absorvedores; números de absorvedores; resolução em energia do detector gama (γ); raio da arandela da fonte e energia de discriminação da via beta (β).

No arquivo de entrada npicos.dat, são fornecidos os intervalos de energia gama que vão formar os eventos coincidentes com as partículas beta (β). Esta seleção será

feita pelos intervalos de canais onde se forma o espectro gama dado pelo próprio programa.

Os arquivos de saída MCBG.out fornece as informações da simulação feita com os dados de entrada tais como: dados de entrada lidos pelo programa; matriz do espectro beta; matriz com as contagens no canal beta, gama e coincidência; total de números aleatórios gerados; tempo de processamento.

O NCBG.out fornece a variação da espessura dos absorvedores, o parâmetro $N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$ a sua incerteza em porcentagem e o parâmetro $(1 - N_c / N_{\gamma}) / N_c / N_{\gamma}$ em função de uma dada espessura do absorvedor.

O código ESQUEMA, como já citado, foi desenvolvido para simular toda a interação da radiação no sistema de coincidência descrito pelo esquema de decaimento do radionuclídeo considerando todos os materiais e geometrias do arranjo experimental, bem como as características das fontes radioativas. As Figuras 1.1 e 1.2 mostram a geometria considerada nas simulações obtidas por meio de código VISED, incluído no pacote MCNP4X ^[21].

Todos os componentes foram considerados e são mostrados em diferentes cores nas figuras. Os detalhes do depósito de fonte radioativa, bem como os substratos de collodion também foram incluídos nos modelos.

Na figura 1.1 pode-se observar a geometria do sistema que foi usado para as medidas de ^{111}In , e na figura 1.2 observa-se a geometria do sistema utilizada para medir o ^{99m}Tc , (os dois sistemas serão descritos no capítulo 2).

Na a figura 1.1 a região em verde, representa o gás P-10 dentro do volume do contador proporcional (PC); em azul escuro estão representados os dois cintiladores de

NaI(Tl); em laranja está representada a blindagem de chumbo; em roxo está representado o ar; em rosa toda estrutura do detector proporcional construída em latão e no meio desta estrutura se encontra a fonte radioativa.

Figura 1.1 Geometria do arranjo experimental do sistema II, considerada na simulação obtida por meio do código VISED.

Na figura 1.2 a região em verde, no centro da figura, representa o gás P-10 dentro do volume do contador proporcional (PC); em azul está representado o cintilador de NaI(Tl); em laranja está representada a blindagem de chumbo; em roxo

está representado o ar; em rosa está representada toda estrutura do detector proporcional o qual possui uma janela fina de alumínio que também está em roxo e no meio desta estrutura se encontra a fonte radioativa.

Figura 1.2 Geometria do arranjo experimental para o sistema I, considerada na simulação obtida através do código VISED..

2. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM SISTEMAS DE COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta\text{--}\gamma$

Neste trabalho foram utilizados dois sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$: o primeiro sistema chamado de sistema II, é constituído por um detector proporcional em geometria 4π para a detecção de elétrons e raios X acoplado a dois detectores de cintilação NaI(Tl), utilizado para as medidas do ^{111}In .

O segundo sistema chamado sistema I foi utilizado para as medidas do $^{99\text{m}}\text{Tc}$, este sistema é constituído por um detector proporcional de geometria 4π , com janela fina acoplado a um detector cintilador de NaI(Tl).

2.1 Arranjo experimental dos sistemas de coincidências $4\pi(\text{PC}) \text{NaI(Tl)}$

Os dois sistemas possuem diferenças entre si, o sistema II possui dois cintiladores que proporcionam uma maior eficiência gama, o sistema I possui uma janela fina de alumínio com espessura de 0,1 mm no detector proporcional.

As características físicas do funcionamento dos detectores proporcionais e dos cristais cintiladores de NaI(Tl) são descritas nos próximos itens.

Nas figuras 2.1 a e 2.1 b é possível observar a diferença entre o sistema II e o sistema I.

a)

b)

Figura 2.1. a) Sistema II, b) Sistema I

2.1.1 Detector Proporcional com geometria 4π

Os detectores proporcionais são de grande utilidade em metrologia das radiações, podendo ser de geometria 2π ou 4π . Para este trabalho foi usado o detector de geometria 4π , essa geometria permite que a fonte seja inserida totalmente no volume sensível do detector apresentando assim uma maior eficiência de contagem, da ordem de 100% para elétrons, pósitrons e partículas alfa de alta energia.

O Contador Proporcional é preenchido com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano, operando à pressão de 0,1 MPa. Os contadores utilizados

neste trabalho são formados por duas partes simétricas de latão com formato interno semicilíndrico. As partes possuem um anodo formado por um fio de aço inoxidável com diâmetro de 25 μm , esticado, preso por isoladores de teflon em um dos lados e ligados a conectores para alta tensão do outro.

As partículas que são emitidas pela fonte ionizam as moléculas do gás. Os elétrons livres formados são acelerados pelo campo elétrico no interior do detector em direção ao anodo ganhando energia no percurso e ionizando outras moléculas do gás promovendo assim um efeito cascata.

Nos dois sistemas são utilizados contadores proporcionais de latão, o contador do sistema I possui uma janela de 0,1 mm de alumínio, como pode ser observado na figura 2.2 a e b.

Figura 2.2 a) detector proporcional sistema II aberto onde é possível visualizar os anodos
b) detector proporcional sistema I onde pode ser visualizada a janela fina 0,1 mm.

2.1.2 Cristal Cintilador NaI(Tl)

A absorção de energia por uma substância e sua reemissão como radiação visível ou quase visível é conhecida como luminescência. O processo de luminescência e excitação inicial pode ser proveniente de muitas origens: luz, reação química e aquecimento.

Na detecção por cintilação são utilizados materiais fluorescentes onde as radiações interagem com o cristal cintilador resultando na ionização e excitação do mesmo tendo assim a produção de luz, esta luz é transmitida para os fotocátodos da válvula fotomultiplicadora. A luz causa a emissão de fotoelétrons do fotocátodo. Estes elétrons são por sua vez acelerados e focalizados nos dinodos da válvula através de um campo elétrico produzido por uma diferença de tensão aplicada à válvula multiplicadora^[22].

Quando os elétrons chegam ao anodo a corrente flui através de uma resistência e causa uma queda na tensão através de um capacitor. O tempo de subida do pulso é de 10% a 90% de sua altura máxima.

Existem muitos cintiladores disponíveis, porém são considerados os que são mais eficientes para a detecção de radiação gama^[23].

No presente trabalho foram utilizados cintiladores de NaI(Tl) ativado com a 0,1% de Tálcio.

No sistema II os cintiladores usados são cristais de NaI(Tl) com dimensões de 76 mm de altura por 54 mm de diâmetro, apresentando uma maior eficiência para a

detecção da radiação gama. No sistema I o cintilador de NaI(Tl) possui dimensões de 54 mm de altura por 25,4 mm de diâmetro.

Na figura 2.3 observa-se a imagem de um dos cintiladores do sistema II, assim como a placa (lingueta) com orifício onde é colocada a fonte radioativa.

Figura 2.3 Detector NaI(Tl) e lingueta onde é colocada a fonte radioativa.

2.2 Sistema Eletrônico para as medidas do ^{111}In

O sistema de coincidência utilizado para as medidas do ^{111}In e eletrônica associada é esquematizado na figura 2.4.

Figura 2.4 Sistema eletrônico 4π (PC) – NaI (TI)^[25]

O sistema eletrônico consiste em pré-amplificadores, amplificadores, analisadores mono canais, geradores de porta e atraso.

Na via beta os pulsos provenientes do 4π (PC), são amplificados e passam por um módulo analisador de altura de pulso, onde discrimina-se o ruído eletrônico, após isso os pulsos são enviados ao mesmo tempo a dois geradores de porta atraso, gerador I e gerador II.

Na via gama os pulsos provenientes dos cintiladores são somados após a amplificação, passando por um analisador mono canal para seleção dos gamas de interesse, sendo enviados em tempos diferentes a dois geradores de porta atraso, gerador I e gerador II.

Os sinais dos dois geradores de porta atraso com diferentes atrasos são enviados ao módulo TAC, o qual converte estes tempos em amplitude (altura de pulso), este método foi desenvolvido no LMN ^[24], é utilizado para fazer o registro das contagens em um analisador multicanal (MCA).

2.3 Preparações das fontes radioativas de ^{111}In

O material radioativo utilizado neste trabalho foi o $^{111}\text{InCl}_3$ fornecido pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN, foram medidas duas soluções denominadas solução 1 e solução 2.

Para a preparação das fontes radioativas utilizou-se substratos de Collodion (nitrato de celulose), com densidade superficial de 10 a 20 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$, mostrados na figura 2.5 a.

As massas das fontes foram determinadas gravimetricamente pelo método do picnômetro ^[25], que consiste na determinação da massa da alíquota pela diferença obtida da pesagem do picnômetro que contém a solução radioativa de ^{111}In antes e

depois da deposição da alíquota no substrato. Os substratos usados foram previamente metalizados com Au (densidade superficial de $10 \mu\text{g cm}^{-2}$). Absorvedores externos de Collodion metalizados com ouro, com espessura de aproximadamente $30 \mu\text{g cm}^{-2}$, como visto na figura 2,5 b, foram utilizados para variação da eficiência.

(a)

(b)

Figura 2.5. (a) Filmes para a produção das fontes, (b) filmes absorvedores.

2.4 Análise de Dados para o ^{111}In

As medidas de ^{111}In , foram analisadas com o programa de computador CONTAC ^[26] desenvolvido no LMN, o qual fornece a atividade da fonte e sua incerteza.

Para sua execução são necessárias as informações como: meia vida da fonte, data e hora de medida e de referência, informações sobre a radiação de fundo, intervalo de canais correspondente às contagens beta, gama e de coincidências, registradas no espectro do multicanal, tempo de medida real e tempo vivo.

Este programa também calcula todas as correções necessárias tais como: correção para a radiação de fundo, correções para o decaimento radioativo da fonte, correções para o tempo morto do sistema de detecção e correção para coincidências acidentais como descrito no item 2.5.

2.5 Correções aplicadas as medidas do sistema 4π (PC) – NaI (TI)

No processo de medição há perda das taxas de contagens, por isso são necessárias algumas correções como: Radiação de fundo, decaimento radioativo, tempo morto e coincidências acidentais.

2.5.1 Radiação de fundo

A radiação de fundo é a medida sem a fonte, essa medida é executada no sistema de detecção mantendo as mesmas condições da medida e é descontada das taxas de contagens observadas nas medidas com as fontes.

2.5.2 Decaimento radioativo

Todo e qualquer processo de emissão de radiação por parte de um radionuclídeo, sendo ele natural ou não recebe o nome de desintegração nuclear ou decaimento nuclear.

Quando a constante de decaimento for muito alta deve ser aplicada essa correção, pois a desintegração da fonte durante a medida poderia alterar os resultados.

Essa correção será mostrada pela equação 17.

$$N_r = N \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (17)$$

onde:

N_r taxa de desintegração na data de referência

N taxa de desintegração na data da medida

λ constante de decaimento do radionuclídeo

t tempo de medida

t_r data de referência

t_m data da medida

2.5.3 Tempo morto

O tempo morto é o tempo mínimo para o processamento dos eventos que separa dois fenômenos consecutivos para que ambos sejam registrados, isso acontece em sistemas de detecção que são acompanhados por um sistema eletrônico. Ao chegar um evento durante este período que está acontecendo este processamento ele não será registrado, ocorrendo então uma perda nas taxas das contagens observadas.

Esta correção será dada pela razão entre os tempos de medida (vivo) e os tempos reais, todos eles sendo fornecidos pelo multicanal.

2.5.4 Coincidências acidentais.

A taxa de coincidências é obtida pela detecção de duas radiações distintas que serão consideradas simultâneas em relação ao tempo de resolução do sistema de detecção.

Alguns eventos acidentais de desintegrações diferentes podem registrar algumas contagens em coincidências os quais são chamados de coincidências espúrias ou coincidências acidentais que poderão interferir no número de contagens, gerando assim um erro no valor absoluto da taxa de contagem.

As correções das coincidências acidentais foram feitas pelo formalismo de Cox-Isham adaptado por Smith^[27].

2.6 Sistema Eletrônico para as medidas do ^{99m}Tc

O sistema eletrônico empregado na medida do ^{99m}Tc é um sistema de coincidência por software (SCS) desenvolvido no LMN, que consiste no uso de uma placa modelo PCI 6132 da National Instruments com quatro canais independentes mostrados na figura 2.7 a e b e um software Labview versão 8.5 [28]. O diagrama do sistema SCS pode ser visto na figura 2.6. Este sistema digitaliza os pulsos provenientes diretamente dos amplificadores.

Neste sistema por software a escolha dos intervalos de interesse e os registros das coincidências são feitos a “posteriori”, sendo, portanto, possível analisar os dados selecionando diferentes regiões sejam provenientes da detecção beta ou gama.

Figura 2.6 Sistema Eletrônico por software (SCS).

Figura 2.7 (a) Placa PCI 6132, (b) Painel de conexão BNC 2110.

A placa de aquisição de dados NI PCI6132 executa a aquisição simultânea de dados em até quatro canais, com quatro conversores (analógico e digitais), possui uma taxa de amostragem de 2,5 MS/s, (MS milhões de amostragens por segundo), por canal, o registro é executado pelo LabVIEW versão 8.5 em blocos de 1 segundo. O tempo total de aquisição corresponde ao tempo necessário para que o sistema digitalize o número de segundos selecionados no painel frontal.

2.7 Preparações das fontes radioativas de ^{99m}Tc

O ^{99m}Tc foi obtido de um gerador de ^{99}Mo do Centro de Radiofarmácia IPEN/SP sendo eluído com uma solução salina a 9%, esta solução foi diluída em temperatura ambiente com H_2O destilada para preparação das fontes radioativas em substrato de Collodion metalizado dos dois lados com ouro como é observado na figura 2.8.

Figura 2.8 Fontes radioativas de ^{99m}Tc .

2.8 Sistema de análise para ^{99m}Tc

Para o cálculo da atividade foram usados os programas SCTAC V.2 ^[29], SCTAC V.5 ^[30] desenvolvidos no LMN, em linguagem FORTRAN, os quais convertem a amplitude dos pulsos digitalizados no SCS em canais, formando um espectro no formato chn com 1024 canais, semelhante ao fornecido pelo módulo TAC utilizado na medida do ^{111}In .

Neste programa estão incorporadas as correções aplicadas para determinação da atividade: correção para o tempo morto do sistema de detecção, correção para a radiação de fundo, correção para o decaimento da fonte e correção para as coincidências acidentais.

Este programa também fornece os espectros gama, beta e de coincidências.

3. PADRONIZAÇÃO DO ^{111}In

O ^{111}In foi produzido em ciclotron pela reação $^{111}\text{Cd}(\text{p}, \text{n})^{111}\text{In}$. O núcleo de ^{111}In decai com uma meia vida de 2,8049 dias pelo processo de captura eletrônica populando os níveis excitados do ^{111}Cd , que decai por meio da emissão de raios gama de 171 keV e 245 keV. Na figura 3.1 é apresentado o esquema simplificado de decaimento do ^{111}In .

Figura 3.1 Esquema do decaimento do ^{111}In [31] .

Na tabela 3.1 são apresentadas as energias e as probabilidades de emissão dos elétrons de conversão interna, raios X, elétrons Auger e radiações gamas do ^{111}In .

Tabela 3.1 Radiações do decaimento do ^{111}In , energias e intensidades ^[32].

Modos de decaimento	Energia (keV)	Intensidade* %
XK α_2	22,9843	23,65 (18)
XK α_1	23,1739	44,47 (26)
XK β_3	26,0615	
XK β_1	26,0958	12,40 (14)
XK β_5	26,304	
XK β_2	26,644	
XK β_4	26,7106	2,26 (7)
XL l	2,77	
XL α	3,127- 3,134	
XL n	2,957	
XL β	3,316 -3,528	
XL γ	3,718- 3,95	
e _{Al} (Cd)	3,404-3,804	100,5 (8)
e _{Ak} (Cd) KLL	18,675 - 19,636	15,5 (4)
KLX	21,923- 23,172	
KXY	25,171- 26,028	
ec _{3,1} K	144,57	8,13 (20)
ec _{3,1} L	167,3 - 167,7	1,02 (3)
ec _{3,1} M	170,51- 170,88	0,197 (5)
ec _{1,0} K	218,64	4,93 (10)
ec _{1,0} M	241,33- 241,81	0,770 (15)
ec _{1,0} L	244,58- 244,95	0,150 (3)
$\gamma_{2,1}$ (Cd)	150,81	0,0015 (15)
$\gamma_{3,1}$ (Cd)	171,28	90,61 (20)
$\gamma_{1,0}$ (Cd)	245,35	94,12 (6)

* Os números dentro dos parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

3.1 Equações para o sistema de coincidências

A equação que rege o método de coincidências para radionuclídeos que decaem pelo processo de captura eletrônica, como é o caso ^{111}In em que há a emissão de raios X ou elétrons Auger e seguido pela emissão gama ou de conversão interna, é escrita a seguir:

$$\frac{N_{(X,A)}N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left[1 + \frac{(1 - \varepsilon_{(X,A)})}{\varepsilon_{(X,A)}} \left[\frac{(\alpha_T \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma})}{1 + \alpha_T} \right] \right] \quad (18)$$

Esta equação é semelhante à equação 14 de forma simplificada, tendo sido mudado apenas o índice ε_{β} pelo $\varepsilon_{(X,A)}$, o qual representa a detecção dos elétrons Auger e os raios X provenientes do processo de captura eletrônica.

Como já comentado anteriormente, para a determinação de N_0 é aplicada a técnica de extrapolação da eficiência. Neste trabalho foram utilizados absorvedores externos para variação da eficiência.

3.2 Aplicação do método de Monte Carlo

Para se verificar o comportamento da curva de extrapolação da atividade versus o parâmetro de ineficiência, foram feitas algumas simulações por meio deste método.

A figura 3.2 mostra o espectro de raios gama ^{111}In do cintilador NaI (TI) simulado por Monte Carlo de acordo com a geometria $4\pi(\text{PC})\text{-NaI(TI)}$ em comparação com o espectro experimental. O intervalo de energia gama utilizada para a medição da coincidência é indicada na figura pelas setas.

Figura 3.2 Espectro experimental NaI(Tl) na cor preta em comparação com o espectro previsto pela simulação de Monte Carlo, que está em rosa. A janela do gama usada é indicada pelas setas.

Foi utilizado o programa ESQUEMA, já descrito anteriormente, o qual determina teoricamente o comportamento da curva de extrapolação da eficiência.

Para a padronização do ^{111}In foram estudadas as inclinações com a simulação pelo método de Monte Carlo (pelo programa ESQUEMA) dos intervalos de: 171keV, 245 keV, 171keV e 245 keV, o pico soma (416 keV) e todos os espectros, incluindo as duas principais energias gama mais a soma dos picos (171 + 245 + 416) keV.

A figura 3.3 mostra a curva de extrapolação prevista pelo código ESQUEMA para os intervalos de energia gama estudados.

Figura 3.3 Curva de extrapolação para as diferentes janelas do gama.

A menor inclinação foi obtida com a janela de 245 keV, porém como é difícil seleccionar essa janela experimentalmente, escolheu-se a janela (171 keV +245 keV), que apresenta uma inclinação um pouco mais elevada quando comparada com a janela gama de 245 keV, porém mais fácil de ser seleccionada experimentalmente.

4. PADRONIZAÇÃO DO ^{99m}Tc

O ^{99m}Tc decai com uma meia vida de 6.007(10) h, principalmente pela transição isomérica para ^{99}Tc , como mostrado na figura 4.1. Transições beta fracas, <0,003% também foram observadas, mas foram desprezadas no presente trabalho.

As transições gama mais intensas são de 2,1726 keV (99,0%) e 140,511 keV (99,0%). A primeira é altamente convertida com um coeficiente de conversão interna total α_T igual a $135(4) \times 10^8$. A segunda apresenta um coeficiente de conversão interna α_T igual a 0,119 (3).

Devido à presença das transições de conversão interna, há uma intensa emissão de raios X na faixa de (2-3) keV e raios X de (18-21) keV, bem como os elétrons Auger de (1,6-2,9) keV e (14-21) keV. Os elétrons de conversão interna são emitidos por sua vez com energias entre (1,73 – 2,13) keV e (119,5 – 140,5) keV.

Figura 4.1 Esquema de decaimento ^{99m}Tc [32].

Na tabela 4.1 são apresentadas as energias e as probabilidades de emissão dos elétrons de conversão interna, raios X, elétrons Auger e gamas do ^{99m}Tc .

Tabela 4.1 Radiações do decaimento do ^{99m}Tc , energias e intensidades ^[33].

Modos de decaimento	Energia (keV)	Intensidade* %
e_{AL}	1,6 -2,9	10,89 (9)
$e_{AK} (KLL)$	14,86-15,58	
$e_{AK} (KLX)$	17,43-18,33	2,15 (8)
$e_{AK} (KXY)$	26,0958	
$ec_{2,1} T$	1,628 – 2,170	99,9 (27)
$ec_{2,1} M$	1,628 – 1,919	88,0 (24)
$ec_{2,1} N$	2,104-2,170	11,7 (3)
$ec_{1,0} T$	119,467-140,510	10,53 (27)
$ec_{1,0} K$	119,467 (1)	9,20 (27)
$ec_{2,0} K$	121,631 (25)	0,67 (6)
$ec_{1,0} L$	137,468-137,834	1,142 (35)
$ec_{2,0} L$	139,632 -139,998	0,215 (20)
$ec_{1,0} M$	139,967-140,258	0,209 (6)
XL	2,134 – 3,002	0,482 (12)
XK α_2	18,251	2,22 (7)
XK α_1	18,3672	4,21 (12)
XK β_3	20,599 }	
XK β_1	20,619 }	1,12 (4)
XK β_5	20,789 }	
XK β_2	21,005	
XK β_4	21,042	0,177 (8)
$\gamma_{2,1} (Tc)$	2,1726 (4)	0,0000000074 (2)
$\gamma_{1,0} (Tc)$	89,6 (3)	0,00104 (20)
$\gamma_{1,0} (Tc)$	140,511	88,5 (2)
$\gamma_{2,0} (Tc)$	142,683 (1)	0,023 (2)
$\gamma_{2,1} (Tc)$	232,7 (2)	0,000084 (15)

* Os números dentro dos parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

4.1 Equações para o sistema de coincidências

Analisando o esquema de decaimento do ^{99m}Tc podemos verificar quais os eventos que podem ser detectados para aplicação do método de coincidências.

No detector proporcional, via beta, são detectados os elétrons de conversão de (1,73 – 2,13) keV provenientes da transição de 142 keV e os elétrons de conversão de (119,5 – 140,5) keV provenientes das transições de 140 keV e 142 keV, assim como os elétrons Auger e os raios X.

No cintilador (via gama) a detecção inclui a radiação gama de 140 keV, e a radiação gama de 142 keV provenientes das respectivas transições; com o uso da janela fina de alumínio no detector proporcional foram detectados também os raios X de (18 - 21) keV, provenientes do rearranjo eletrônico ocasionado pela emissão dos elétrons de conversão interna.

Podemos escrever as equações que regem o método de coincidências no sistema de detecção 4π (PC)- NaI(Tl) , considerando as radiações detectadas.

4.1.1 Equações para medida do ^{99m}Tc

$$\frac{N_{4\pi}}{N_0} = a\varepsilon_{ec1} + a(1 - \varepsilon_{ec1}) \left\{ \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} \left[\varepsilon_{ce2} + (1 - \varepsilon_{ce2}) \cdot \varepsilon_{XA(K+L)} + \frac{1}{1 + \alpha_{2T}} \cdot \varepsilon_{\beta\gamma2} \right] \right\} + (1 - a) \left\{ \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} \left[\varepsilon_{ec3} + (1 - \varepsilon_{ec3}) \varepsilon_{XA(K+L)} \right] + \frac{1}{1 + \alpha_{3T}} \varepsilon_{\beta\gamma3} \right\} \quad (19)$$

$$\frac{N_{\gamma}}{N_0} = a \left(\frac{\alpha_{2K}}{1 + \alpha_{2T}} \omega_K \varepsilon_{\gamma XK} + \frac{1}{1 + \alpha_{2T}} \varepsilon_{\gamma^2} \right) + (1 - a) \left(\frac{\alpha_{3K}}{1 + \alpha_{3T}} \omega_K \varepsilon_{\gamma XK} + \frac{1}{1 + \alpha_{3T}} \varepsilon_{\gamma^3} \right) \quad (20)$$

$$\frac{N_c}{N_0} = a \left(\varepsilon_{ec1} \frac{1}{1 + \alpha_{2T}} \varepsilon_{\gamma^2} + \varepsilon_{ec2} \frac{\alpha_{2K}}{1 + \alpha_{2T}} \omega_K \varepsilon_{\gamma XK} \right) + (1 - a) \varepsilon_{ec3} \frac{\alpha_{3K}}{1 + \alpha_{3T}} \omega_K \varepsilon_{\gamma XK} \quad (21)$$

Onde:

N_0 taxa de desintegração, isto é, a atividade;

$N_{4\pi}$ contagem registrada no detector proporcional

N_{γ} contagem registrada no detector NaI(Tl)

N_c contagem de coincidências

ε_{ec1} eficiência para os elétrons de conversão para as energias (1,73 – 2,13) keV do detector 4 π (PC).

ε_{ec2} eficiência para os elétrons de conversão para as energias (119,5 – 140,5) keV do detector 4 π (PC).

ε_{ec3} eficiência para os elétrons de conversão para as energias (121,6 – 142,6) keV do detector 4 π (PC).

ε_{XA} eficiência de raios X e elétrons Auger do detector 4 π (PC).

α_{2T} , α_{3T} são os coeficientes de conversão interna totais, que correspondem às transições de 140,5 e 142,7 keV, respectivamente.

α_{2K} , α_{3K} são os coeficientes de conversão interna do nível K.

$\varepsilon_{\beta\gamma 2}$ e $\varepsilon_{\beta\gamma 3}$ são as eficiências do detector proporcional para as radiações gama de 140,5 e 142,7 keV, respectivamente.

$\varepsilon_{\gamma XK}$ eficiência de raios XK do detector NaI(Tl).

ω_k coeficiente de fluorescência.

Combinando as equações 19, 20 e 21 teremos:

$$\begin{aligned} \frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_c N_0} = & a \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} + (1 - a) \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} + \left(\frac{a}{1 + \alpha_{2T}} + \frac{(1 - a)}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} + \\ & + \frac{(1 - \varepsilon_{ce})}{\varepsilon_{ce}} \left[\left(a \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} + (1 - a) \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{XAK} + \left(\frac{a}{1 + \alpha_{2T}} + \frac{(1 - a)}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} \right] \quad (22) \end{aligned}$$

4.1.2 Equações para medida dos elétrons de conversão interna de 2keV juntamente com os elétrons de maior energia em coincidência com radiação gama de 140 keV.

Para a medida dos elétrons de conversão interna de 2 keV juntamente com os elétrons de maior energia detectados no detector proporcional em coincidência com as radiações gamas de 140 keV no cintilador, as equações do método de coincidências podem ser simplificadas considerando-se:

$$\varepsilon_{ce2} = \varepsilon_{ce3} = 1 \quad ;$$

$$\varepsilon_{\beta\gamma 2} = \varepsilon_{\beta\gamma 3} = \varepsilon_{\beta\gamma} \quad \text{e}$$

$$\varepsilon_{XK} = 0,$$

Tem-se:

$$\begin{aligned} \frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_0 N_c} = & a + (1-a) \left\{ \frac{\alpha_{3T}}{1+\alpha_{3T}} \left[\varepsilon_{ce2} + (1-\varepsilon_{ce2}) \varepsilon_{X(K+L)} \right] + \frac{1}{1+\alpha_{3T}} \varepsilon_{\beta\gamma} \right\} + \\ & + \frac{(1-\varepsilon_{ce1})}{\varepsilon_{ce1}} \left\{ \left[a \frac{\alpha_{2T}}{1+\alpha_{2T}} + (1-a) \frac{\alpha_{3T}}{1+\alpha_{3T}} \right] \left[\varepsilon_{ce2} + (1-\varepsilon_{ce2}) \varepsilon_{X(K+L)} \right] + \left[\frac{a}{1+\alpha_{2T}} + \frac{(1-a)}{1+\alpha_{3T}} \right] \varepsilon_{\beta\gamma} \right\} \quad (23) \end{aligned}$$

Neste caso, a eficiência do detector proporcional é devida principalmente aos elétrons de conversão de (1,73 – 2,13) keV, com pequena contribuição dos elétrons de maior energia. Quando $\frac{(1-\varepsilon_{ce1})}{\varepsilon_{ce1}}$ tender a 0, o valor extrapolado N_0 corresponderá a atividade sem qualquer correção adicional.

4.1.3 Equações para medida dos elétrons de conversão (119 - 140) keV em coincidência com os Raios X de (18 - 21) keV

No caso da medida ser feita considerando os elétrons de conversão de (119,5 – 140,5) keV detectados no detector proporcional em coincidência com os raios X de (18 - 21) keV detectados no cristal cintilador, considerando:

$$\varepsilon_{ce2} = \varepsilon_{ce3} = \varepsilon_{ce} \quad ;$$

$$\varepsilon_{\beta\gamma2} = \varepsilon_{\beta\gamma3} = \varepsilon_{\beta\gamma} \quad e$$

$$\varepsilon_{\gamma2} = \varepsilon_{\gamma3} = 0,$$

tem se:

$$\begin{aligned} \frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_c N_0} = & a \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} + (1 - a) \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} + \left(\frac{a}{1 + \alpha_{2T}} + \frac{(1 - a)}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} + \\ & + \frac{(1 - \varepsilon_{ce})}{\varepsilon_{ce}} \left[\left(a \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} + (1 - a) \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{XAK} + \left(\frac{a}{1 + \alpha_{2T}} + \frac{(1 - a)}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} \right] \end{aligned} \quad (24)$$

A equação (24) corresponde ao caso ideal, onde os picos de absorção total no detector gama podem ser totalmente separados. No entanto, na detecção com NaI(Tl) o eventos do espalhamento Compton do gama de 140 keV caem em baixo do pico de raio X como pode ser visto na figura 4.2. Esta contribuição deve ser subtraída do pico de raio X para a manter a simplificação da equação 24.

Desse modo, o valor da atividade quando parâmetro de ineficiência tende a zero é dada pela equação 25:

$$\frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left[a \frac{\alpha_{2T}}{1 + \alpha_{2T}} + (1 - a) \frac{\alpha_{3T}}{1 + \alpha_{3T}} + \left(\frac{a}{1 + \alpha_{2T}} + \frac{(1 - a)}{1 + \alpha_{3T}} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} \right] \quad (25)$$

Os termos entre colchetes correspondem ao fator de correção (0,114), que deve ser aplicado ao valor extrapolado para determinação de N_0 , uma vez que o valor extrapolado é uma fração da atividade, referente à contribuição dos elétrons de conversão interna de 140 keV + 142 keV.

4.2 Aplicação do método de Monte Carlo para o ^{99m}Tc

Para o ^{99m}Tc foi realizada a simulação pelo método de Monte Carlo para os dois métodos usados neste trabalho.

Nesta simulação foi utilizado o programa ESQ POS 4, a qual inclui a detecção dos raios X em ambos os detectores provenientes dos processos de conversão interna.

Na figura 4.2 é apresentado o espectro de raios gama ^{99m}Tc simulado por Monte Carlo, em comparação com o espectro experimental do cintilador de NaI (TI) .

Figura 4.2 Espectro experimental NaI(Tl) na cor preta em comparação com o espectro previsto pela simulação de Monte Carlo, que está em vermelho (^{99m}Tc).

O pico à direita corresponde ao fotopico de absorção total do gama de 140 keV, o pequeno pico à esquerda corresponde aos picos de raios X de (18 – 21) keV provenientes do processo de conversão. Nota-se também nessa região a radiação de fundo resultante da interação por efeito Compton do gama de 140 keV. A estrutura central corresponde ao continuo Compton ou retroespalhamento dos fótons. Os pontos na cor preta correspondem ao espectro experimental e os na cor vermelha ao cálculo de Monte Carlo. Como pode ser visto os dois espectros apresentam boa concordância.

As curvas de extrapolação obtidas para os dois métodos, pela simulação de Monte Carlo, são apresentadas no capítulo 5 comparadas com os valores experimentais.

5. RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 Resultados da Padronização do ^{111}In

Para padronização do ^{111}In no sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ foram utilizadas duas soluções distintas denominadas solução 1 e solução 2, sendo preparadas 6 fontes para cada solução.

A eficiência do detector proporcional foi variada de 32% a 20% para a solução 1 e de 25% a 17% para a solução 2, por meio do uso de absorvedores de Collodion colocados sobre e sob as fontes.

A baixa eficiência foi resultante do alto valor do coeficiente de fluorescência dos raios X em concorrência com os elétrons Auger, ocasionando intervalo de extrapolação grande, com um aumento da incerteza no valor final extrapolado.

Os dados registrados no sistema foram analisados pelo programa CONTAC determinando os valores de $N_{(X,A)}N_{\gamma}/N_c$ e $(1 - N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$.

Foi verificada a presença de ^{114}In , esta impureza decai pela emissão beta seguida de radiação gama. A quantidade de impureza foi determinada pela medida em espectrômetro de HPGe previamente calibrado. As porcentagens de impureza na data de referência foram de 0,02% e de 0,09% nas soluções 1 e 2, respectivamente.

A atividade foi determinada por meio de ajuste pelo método de mínimos quadrados, pelo programa LINFIT e as incertezas determinadas pela análise de covariância.

Nas tabelas 5.1 e 5.2 são apresentados os valores da eficiência e das atividades experimentais, já descontada a impureza.

Tabela 5.1 Valores da eficiência para a solução 1 e atividade experimental corrigida para impureza obtidos para a fonte de ^{111}In juntamente com as incertezas consideradas (em %) e respectivas correlações.

Solução 1 Medidas	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_{(X,A)} N_\gamma/N_C)^*_{exp}$ (10^3 cps g^{-1})	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ massa	$\sigma_{\text{decaimento}}$
1	31,79(12)	2,1460	729,8 (31)	0,16	0,37	0,1	0,00
2	29,53(11)	2,3860	735,0(32)	0,16	0,32	0,1	0,00
3	28,90(9)	2,6243	741,3(23)	0,16	0,37	0,1	0,00
4	28,36(14)	2,5261	748,3(40)	0,21	0,48	0,1	0,01
5	27,63(10)	2,6197	743,7(31)	0,11	0,27	0,1	0,01
6	27,59(9)	2,4605	741,5(27)	0,21	0,42	0,1	0,01
7	24,64(9)	3,0590	760,9(32)	0,21	0,37	0,1	0,01
8	22,58(9)	3,4279	779,5(37)	0,16	0,37	0,1	0,01
9	21,27(6)	3,7015	785,9(24)	0,27	0,53	0,1	0,01
10	20,15(11)	3,9616	794,8(48)	0,11	0,27	0,1	0,00
Correlação				0	0	1	1

*Os números dentro dos parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

Tabela 5.2 Valores de eficiência para solução 2 e atividade experimentais obtidos para o ^{111}In juntamente com as incertezas consideradas (em %) e respectivas correlações.

Solução 2	N_c/N_γ	$(1 N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_{(X,A)} N_\gamma/N_C)^{*}_{exp}$	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
Medidas	(%)		$(10^3 \text{ cps g}^{-1})$				
			Atividade				
1	25,23 (3)	2,9643	759,8(15)	0,04	0,17	0,1	0,02
2	24,50(4)	3,0824	761,1(16)	0,05	0,17	0,1	0,02
3	23,50(4)	3,2549	770,0(16)	0,04	0,15	0,1	0,02
4	23,16(4)	3,3159	768,5(15)	0,05	0,17	0,1	0,02
5	22,90(4)	3,3677	774,7(33)	0,03	0,12	0,1	0,02
6	22,84(4)	3,3782	773,8(29)	0,05	0,17	0,1	0,03
7	22,73(3)	3,3999	774,5(15)	0,05	0,17	0,1	0,03
8	22,19(5)	3,5060	778,5(19)	0,05	0,17	0,1	0,03
9	21,80(3)	3,5862	779,3(12)	0,06	0,21	0,1	0,03
10	21,12(4)	3,7355	786,5(19)	0,06	0,21	0,1	0,03
11	19,61(4)	4,0984	801,1(20)	0,06	0,22	0,1	0,03
12	19,03(4)	4,2560	805,9(20)	0,06	0,22	0,1	0,03
13	17,70(3)	4,6508	821,7(16)	0,06	0,15	0,1	0,03
Correlação				0	0	1	1

*Os números dentro dos parênteses correspondem à incerteza nos últimos dígitos.

Nas figuras 5.1 e 5.2 é possível observar as curvas de extrapolação obtidas variando a eficiência com absorvedores externos para as soluções 1 e 2, respectivamente. Os pontos correspondem aos valores obtidos experimentalmente e a linha corresponde á curva ajustada.

Figura 5.1 Curva de extrapolação para os valores experimentais da solução 1, os pontos correspondem as medidas experimentais e a reta corresponde ao ajuste.

Figura 5.2 Curva de extrapolação para os valores experimentais da solução 2, os pontos correspondem as medidas experimentais e a reta corresponde ao ajuste.

As medidas de ^{111}In realizadas no sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, foram analisadas com o programa de computador CONTAC e LINFIT desenvolvidos no LMN.

A simulação de Monte Carlo forneceu uma curva de extrapolação em que o valor da atividade extrapolada corresponde ao número de histórias consideradas, ou pela normalização à atividade unitária.

Para comparação com os valores experimentais determina se a razão de $(N_{(X,A)}N_\gamma/N_c)_{MC}$ determinado pela simulação que corresponde ao valores do parâmetro de eficiência experimental.

Aplicando se este valor aos dados experimentais de $(N_{(X,A)}N_\gamma/N_c)_{exp}$, correspondentes, obtém se um valor constante que corresponde à atividade extrapolada determinada pela curva de extrapolação prevista pela simulação.

As Tabelas 5.3 e 5.4 apresentam os valores de $(N_{(X,A)}N_\gamma/N_c)_{exp}/(N_{(X,A)}N_\gamma/N_c)_{MC}$ para as soluções 1 e 2, respectivamente. A incerteza estatística da simulação de Monte Carlo é de cerca de 0,1% para um número de avaliações igual a 10^7 .

Tabela 5.3 Valores da atividade para solução 1 por Monte Carlo e as respectivas incertezas.

Solução 1	N_c/N_γ	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_{(X,A)} N_\gamma/N_C)_{MC}$ (10^3 cps g^{-1})	$\sigma_{(MC)}$
1	21,46	2,1460	648,0 (46)	0,10
2	23,86	2,3860	652,0 (47)	0,11
3	24,60	2,6243	649,4 (36)	0,11
4	25,26	2,5261	653,0 (56)	0,11
5	26,19	2,6197	644,0 (46)	0,11
6	26,24	2,4605	641,9 (41)	0,11
7	30,59	3,0590	644,4 (46)	0,12
8	34,27	3,4279	648,8 (51)	0,12
9	37,01	3,7015	644,7 (36)	0,12
10	39,61	3,9616	648,9 (62)	0,13
Média			647,6 (46)	

Tabela 5.4 Valores da atividade para solução 2 por Monte Carlo e as respectivas incertezas.

Solução 2	N_c/N_γ	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$(N_{(X,A)} N_\gamma/N_C)_{MC}$ (10^3 cps g ⁻¹)	σ_{MC}
1	33,17	2,9643	644,4 (37)	0,12
2	29,64	3,0824	646,9 (37)	0,11
3	33,99	3,2549	644,6 (36)	0,12
4	33,78	3,3159	643,0 (37)	0,12
5	35,86	3,3677	643,2 (35)	0,12
6	30,82	3,3782	644,3 (37)	0,12
7	32,54	3,3999	645,8 (37)	0,12
8	33,67	3,5060	645,7 (37)	0,12
9	35,06	3,5862	644,6 (39)	0,12
10	37,35	3,7355	645,6 (39)	0,13
11	40,98	4,0984	644,9 (40)	0,13
12	42,56	4,2560	645,4 (40)	0,13
13	46,50	4,6508	645,3 (36)	0,14
Média			644,9(40)	

A tabela 5.5 apresenta os parâmetros experimentais obtidos por ajuste linear utilizando o código LINFIT ^[34] para as duas soluções analisadas comparado com as atividades obtidas pelas curvas de extrapolação previstas por Monte Carlo.

Tabela 5.5 Valores dos parâmetros obtidos pelo ajuste linear quando comparada com a simulação de Monte Carlo para as duas soluções medidas.

Medida da solução	Atividade Experimental kBq. g ⁻¹	Inclinação Experimental	Monte Carlo Atividade* kBq. g ⁻¹
1	648 ± 5	0,057 ± 0,003	647 ± 1
2	647 ± 3	0,058 ± 0,001	645 ± 1

* Monte Carlo inclinação: 0.0571 ± 0.0001

Como pode ser visto na Tabela 5.5 os resultados das soluções 1 e 2 apresentam o valor de mesma inclinação e conseqüentemente boa concordância com resultados de Monte Carlo.

Para comparação dos resultados experimentais das duas soluções com a curva de extrapolação fornecido pela simulação, figura 5.3 os resultados experimentais foram normalizados dividindo-se a razão $(N_{(X,A)}N_{\gamma}/N_c)_{exp}$ de cada valor de eficiência, pela atividade extrapolada experimentalmente.

Figura 5.3 Curva de extrapolação, a linha sólida refere-se ao cálculo de Monte Carlo, os triângulos correspondem às fontes da solução 1 e os quadrados às fontes da solução 2 com as respectivas incertezas experimentais.

É possível observar na figura 5.3 que existe uma concordância em todo o intervalo das eficiências que foram obtidas experimentalmente.

A aplicação do método de Monte Carlo permite um planejamento adequado das medidas para o método de coincidências, principalmente para radionuclídeos com esquema de desintegração complexos.

Os componentes de incertezas parciais são apresentados em porcentagem na Tabela 5.6. As principais incertezas envolvidas nas medidas foram: estatística de contagem, tempo morto, meia vida, radiação de fundo e extrapolação da eficiência. Todas as incertezas foram incluídas no ajuste de mínimos quadrados.

Tabela 5.6 Componentes parciais da incerteza, em % devida a concentração da atividade.

Componentes	%	Correlação
Estatística de Contagem	0,40	0
Massa	0,10	1
Tempo morto	0,05	1
Tempo de resolução	0,05	1
Radiação de fundo	0,40	0
Impureza	0,10	1
Dcaimento	0,01	1
Curva de extrapolação da eficiência	0,76	Ajuste Polinomial
1= correlacionado 0= não correlacionado		

5.2 Resultados da padronização do ^{99m}Tc

A padronização do ^{99m}Tc foi feita por dois métodos distintos denominados método 1 e método 2. No método 1 foi analisado o espectro correspondente às contagens dos elétrons de conversão de 2 keV juntamente com os elétrons de maior energia, em coincidência com a radiação gama de 140 keV, no método 2 foi analisado o espectro correspondente à contagem dos elétrons de (119,5 – 140,5) keV em coincidência com os raios X de (18 - 21) keV.

As figuras 5.4 e 5.5 apresentam os espectros fornecidos pela placa PCI 6132, obtidos pela digitalização dos pulsos provenientes diretamente dos amplificadores conectados ao detector proporcional e ao cristal de NaI(Tl) , respectivamente.

Figura 5.4 Espectro dos elétrons de 2 keV e (119,5 – 140,5) keV obtidos no detector proporcional fornecido pela placa PCI 6132.

Figura 5.5 Espectro do gama de 140 keV e dos raios x de (18 – 21) keV que são obtidos no detector de NaI(Tl) fornecido pela placa PCI 6132.

Os dados apresentados nestes dois espectros foram analisados por software, por meio dos programas SCTAC V.2 e SCTAC V.5 os quais a partir da análise das amplitudes dos pulsos e do registro de ocorrência destes pulsos, armazenados pela placa PCI 6132 fornecem as contagens beta, gama e de coincidências, criando um arquivo adequado para a determinação da atividade da amostra.

Por meio destes programas é possível seleccionar as regiões de interesse nas duas vias de detecção e obter a partir de uma única medida, uma curva de extrapolação completa.

A figura 5.6 mostra a curva de extrapolação experimental da fonte 1 obtida por meio da medida considerando-se todo o espectro do canal beta e seleccionando no canal gama o pico de absorção total de 140 keV. Neste caso, a fonte de ^{99m}Tc foi medida sem absorvedores de Collodion adicionais e a eficiência beta foi mudada por discriminação de altura de pulso usando o sistema de coincidência por software.

O parâmetro de ineficiência experimental iniciou em torno de 11 porque apenas uma pequena fração de elétrons de conversão (1,6 – 2,1) keV pode ser detectado.

Ainda na figura 5.6, a simulação de Monte Carlo com código ESQUEMA está em vermelho e a parte experimental em branco.

Observa-se um acordo muito bom entre os dados experimentais e a curva de extrapolação teórica. A inclinação obtida é muito próxima do valor esperado, dado pela equação (23).

Figura 5.6 A figura corresponde a curva de extrapolação da fonte 1 de ^{99m}Tc e corresponde ao pico de absorção total de 140 keV e todo o espectro no detector 4π . Em vermelho o cálculo teórico feito por Monte Carlo, em branco os pontos correspondem ao experimental. As barras de erro são muito pequenas para serem vistas (o erro estatístico é de cerca de 0.5%).

A figura 5.7 mostra a curva de extrapolação experimental obtida medindo o espectro do canal beta acima dos elétrons de 2 keV e definindo o canal gama em (18- 21) keV. A curva é quase plana como esperado.

Figura 5.7 Curvas de extrapolação obtidas para ^{99m}Tc , o canal do gama em (18- 21) keV pico de absorção total e contando todo o espectro de detector 4π acima de 2 keV. Os círculos em rosa são pontos experimentais e os pontos em verde são o Monte Carlo com as respectivas incertezas.

Nesta figura os pontos em verde correspondem à simulação por Monte Carlo, como pode ser visto, um acordo razoável foi obtido entre os cálculos de Monte Carlo e experimental. A eficiência experimental no canal beta atingiu um valor máximo em torno de 95%, enquanto que na simulação por Monte Carlo o cálculo desse valor foi quase 90%.

Uma razão para essa diferença talvez seja a função de resolução aplicada ao espectro calculado no contador proporcional que afeta a região de baixa energia do

espectro. Na região de alta eficiência beta verificou-se experimentalmente um comportamento não linear, mas plano, como pode ser visto na figura 5.7.

Os parâmetros da curva de extrapolação das três fontes de ^{99m}Tc , preparadas a partir do mesmo lote, obtidos com os dois métodos descritos são apresentados na Tabela 5.7. A curva de extrapolação obtida no método 1 corresponde a uma curva de grau 1, de acordo com a previsão de Monte Carlo. No método 2 a curva ajustada corresponde a uma constante.

Tabela 5.7 Parâmetros da extrapolação obtidos para os dois métodos descritos

fonte	Método 1		Método 2
	$(N_{\beta} N_{\gamma}/N_C)^*$ (10^3 cps g^{-1})	Inclinação *	$(N_{\beta} N_{\gamma}/N_C)^*$ (10^3 cps g^{-1})
1	$94,88 \pm 0,68$	$0,1144 \pm 0,0009$	$11,06 \pm 0,03$
2	$95,08 \pm 0,59$	$0,1124 \pm 0,0007$	$10,91 \pm 0,01$
3	$95,84 \pm 0,60$	$0,1067 \pm 0,0007$	$10,56 \pm 0,06$

* Incerteza estatística

Para a determinação da atividade pelo método dois foi aplicado o fator de correção igual a 0,114 (3), relativo à probabilidade de emissão dos elétrons de conversão interna de (119 -140) keV .

Na Tabela 5.8 são apresentadas as atividades das três fontes medidas. As médias ponderadas das atividades são comparadas com valores obtidos pela simulação de Monte Carlo. Como pode ser visto os valores estão de acordo dentro da incerteza experimental.

Tabela 5.8 Comparação dos resultados obtidos a partir das atividades e incertezas utilizando o método 1 e o método 2.

Fonte	Método 1	Método 2	Monte Carlo *
	(kBq g⁻¹)	(kBq g⁻¹)	(Método 1)
			(kBq g⁻¹)
1	94.88 ± 0.76	97.4 ± 2.8	93.76 ± 0.75
2	95.08 ± 0.68	96.4 ± 2.8	93.96 ± 0.67
3	95.84 ± 0.69	93.0 ± 2.7	94.72 ± 0.68
Média	95.29 ±0.41	95.6 ± 1.6	94.16 ±0.41
Ponderada			

* Monte Carlo Inclinação = (0.1141 ± 0.0009)

Por meio do sistema de coincidência digital seria, também, possível determinar a atividade, selecionando apenas os elétrons 2 keV no canal beta em coincidência com a radiação gama de 140 keV, como sugerido por Sahagia (2006)^[33].

Neste caso, a inclinação da curva de extrapolação é bem menor, do que a inclinação obtida no método 2. No entanto, este método apresenta um inconveniente que é a subtração no espectro da contribuição dos elétrons de conversão de (119,5 – 140,5) keV sob os elétrons de 2 keV, o que é difícil de estimar.

Esta medida pode ser feita quando são usados absorvedores externos para variação da eficiência, como pode ser visto na figura 5.8 que mostra dois espectros do detector $4\pi(\text{PC})$.

O espectro em vermelho foi obtido com uma fonte de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ preparada em substrato de Collodion metalizado com $10\mu\text{g.cm}^{-2}$ de ouro em ambos os lados. Neste espectro pode ser facilmente vista a contribuição dos elétrons de (1,6 – 2,1) keV.

O outro espectro em preto corresponde à mesma fonte, à qual foram adicionados 3 absorvedores de Collodion correspondendo a uma espessura de $50\mu\text{g.cm}^{-2}$. Neste espectro os elétrons de baixa energia desapareceram (foram absorvidos no Collodion), em seu lugar pode ser visto um fundo plano, correspondendo à contribuição dos elétrons de alta energia de (119,5 – 140,5) keV da conversão interna.

Figura 5.8 Espectro do detector 4π em vermelho corresponde a uma fonte de ^{99m}Tc sem absorvedores adicionais, em preto a mesma fonte porém com 3 absorvedores adicionados à fonte correspondendo a uma espessura de $50 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$.

Na tabela 5.9 estão apresentadas as incertezas parciais envolvidas no presente experimento. Para o Método 1, a principal contribuição vem do procedimento de extrapolação. Para o Método 2 a principais contribuições vem do valor da probabilidade de elétrons de conversão por decaimento e da radiação de fundo sob o pico de raio X.

Tabela 5.9 Incertezas parciais envolvidas na determinação da atividade (em porcentagem, nível de confiança de 68%) Tipos A e B são erros estatísticos e sistemáticos.

Componentes	Tipo de Erro	Método		Observações
		1	2	
Estatística de contagem	A	0,63	0,25	Extrapolação estatística
massa	B	0,10	0,10	Certificado da balança
Tempo morto	B	0,10	0,10	Método do pulsador
Radiação de fundo	A	0,30	1,45	Contagem estatística
decaimento	B	0,02	0,02	Meia vida
Tempo de resolução	B	0,10	0,10	Correção estatística das coincidências acidentais
Fator de correção	B		2,5	Probabilidade dos elétrons de conversão por decaimento
Incertezas combinadas quadraticamente		0,72	2,91	

6. CONCLUSÕES

O resultado da atividade experimental das duas soluções de ^{111}In concorda com o resultado obtido pela simulação de Monte Carlo. As inclinações obtidas experimentalmente também concordam entre si e com a inclinação da simulação. Demonstrando que o LMN está capacitado a padronizar soluções de ^{111}In com exatidão da ordem de 0,8%.

Estas medidas comprovam mais uma vez que a aplicação do método de Monte Carlo permite um planejamento adequado das medidas para o método de coincidências, principalmente para radionuclídeos com esquema de desintegração complexos.

A medida da atividade absoluta do $^{99\text{m}}\text{Tc}$ foi realizada por meio de um sistema de coincidência software desenvolvido no LMN. O uso deste sistema possibilitou a obtenção da curva de extrapolação por meio de uma única medida, esta característica é muito importante, principalmente para medida de radionuclídeos de meia vida curta como o $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6 horas).

Para esta padronização foram aplicados dois métodos distintos de medida; o método 1 no qual foi analisado o espectro correspondente às contagens dos elétrons de conversão de 2 keV juntamente com os elétrons de maior energia, em coincidência

com a radiação gama de 140 keV e o método 2 em que foi analisado o espectro correspondente à contagem dos elétrons de (119 -140) keV em coincidência com os raios X de (18- 21) keV.

As atividades experimentais obtidas para os dois métodos estão de acordo dentro da incerteza experimental, indicando que a metodologia adotada é adequada.

Estes resultados foram também comparados com simulações de Monte Carlo; houve uma boa concordância entre as curvas de extrapolação experimental e a simulada por Monte Carlo para o método 1, a comparação com o método 2 apresentou diferenças que deverão ser analisadas em detalhe.

Como trabalhos futuros sugerimos a padronização do ^{111}In em sistema de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ com detector de germânio hiper puro, utilizando duas janelas gama independentes de 171 keV e 245 keV.

Com relação ao $^{99\text{m}}\text{Tc}$ a medida em coincidência dos elétrons de 2 keV com o gama de 140 keV, variando a eficiência com absorvedores externos.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ¹ BACCARELI, A. M., DIAS, M.S., KOSKINAS, M, F. *Coincidence System For Standardization Of Radionuclides Using A 4- π Plastic Scintillator Detector*. Applied Radiation and Isotopes 58, 239-244, 2003.
- ² HILÁRIO, K., F.,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, Tese de Doutorado – Universidade de São Paulo.
- ³ LAVRAS, W. O., KOSKINAS, M. F., DIAS, M. S. *Primary Standardization of Sm-153 Radioactive Solution*. In: National Meeting on Nuclear Applications VI ENAN, 2002, Rio de Janeiro. INAC 2002 International Nuclear Atlantic Conference. São Paulo: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 2002. v. 1. p. 1-1.
- ⁴ 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, v. 34, n. 3, p. 939-941, 2004.
- ⁵ Hattie M., Dias, M. S.; Fonseca, K. A., Koskinas M. F. *Absolute desintegration rate measurements of GA-67*. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 49, n. 9-11, p. 1173 – 1177, 1998.
- ⁶ BIPM, Bureau International des Poids et Mesures. <http://www.bipm.org>.. Acesso em 04/06/2007.
- ⁷ PUGLIESI, R. *Sistemas de Coincidência para medidas absolutas de atividades de radionuclídeos empregando cintilador líquido*. Dissertação de Mestrado IPEN 1978.
- ⁸ CHEMISTRY EXPLAINED documento disponível em <http://www.chemistryexplained.com/elements/C-K/Indium.html>>. Acesso em 20/03/2010.
- ⁹ MURPHY, C.A. e FERRO-FLORES, G. *Compuestos de Tecnécio*. 1ª ed. México: Instituto Nacional de Ciencias Médicas y Nutrición Salvador Zubirán, 2003.
- ¹⁰ DIAS, M. S., *Esq –Pos4 código Monte Carlo* Laboratório de metrologia nuclear, IPEN relatório interno 2011.

-
- ¹¹ KNOLL, G. f., *Radiation detection and measurement*. 3rd Edition. John Willey & Sons, Inc., 1999.
- ¹² EISBERG, R.; RESNICK, R., *Física Quântica. Átomos, moléculas, sólidos núcleos e partículas*. Rio de Janeiro: Campus, 2002.
- ¹³ CHUNG, K. C., *Introdução à Física nuclear*. Rio de Janeiro: EDURJ, 2001.
- ¹⁴ PRICE, W.J., *Nuclear Radiation detection*. McGraw-Hill, 1958.
- ¹⁵ TOUFEN, L. D., *Sistema para Medidas de Estados isomérico.*, Dissertação de mestrado, universidade de São Paulo, São Paulo 2008.
- ¹⁶ BAERG, A. P., *Measurement of radioactivity disintegration rate by the coincidence method*. Metrologia 2 (1) p: 23-32, 1966
- ¹⁷ CAMPION, P.J., *The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors*. Int. J. Appl. Radiat. Iso., 4 , p: 232 – 248, 1959
- ¹⁸ BAERG, A.P., *The efficiency extrapolation method in coincidence counting. Nuclear Instruments and Methods*. 112 , p: 143 – 150, 1973.
- ¹⁹ SÓBOL, I. M. *Método de Monte Carlo*. Moscou, Mir, 1976.
- ²⁰ TAKEDA, M.N., *Aplicação do método de Monte Carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexo em sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$* . Tese de doutoramento, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2006.
- ²¹ ORNL. *Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP5*, RSICC Computer Code Collection, Oak Ridge National Laboratory 2006.
- ²² BATISTA J. Carvalho. H. V. *O contador de cintilações NaI (TI)*, Monografia, departamento de física da FCUL, Janeiro de 2000.
- ²³ 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.*, Departamento de Energia Nuclear (DEN), Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), 50740-540, Recife-PE, Brasil Scientia Plena volume 5, número 4. 2009

-
- ²⁴ LAVRAS, W., KOSKINAS, M.F., DIAS, M.S. AND FONSECA, K.A., *Primary Standardization Of ^{51}Cr radioactive solution. V Regional IRPA Congress – Congress on radiation protection and Safety, II Iberian and Latin American Congress of Radiological Protection Societies*, Recife – PE- Brasil, 2001.
- ²⁵ CAMPION, P.J., *Procedures for accurately diluting and dispersing radioactive solutions*. . Bureau internacional de Poids e Mesures, (monografie BIPM- 1), Paris 1975.
- ²⁶ DIAS, M. S., *CONTAC* – código para cálculo da atividade em sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$. Laboratório de metrologia Nuclear, IPEN, Relatório interno 1999.
- ²⁷ SMITH, D.L., *Some developments inst he Cox- Isham theory to coincidence corrections, including the extension to the computer-discrimination method*. Applied radioation Isotopes, A, 38(10), p.813-822, 1987.
- ²⁸ NATIONAL INSTRUMENTS., *Curso do software – versão 6.0 , código do manual 322682^a-01 Ed.*, de novembro de 2001.
- ²⁹ DIAS, M. S., *SCTAC2* – Código para cálculo de atividades utilizando um sistema por software (SCS). Laboratório de metrologia nuclear, IPEN relatório interno 2009.
- ³⁰ DIAS, M. S., *SCTAC5. V* – Código para cálculo de atividades utilizando um sistema por software (SCS). Laboratório de metrologia nuclear, IPEN relatório interno 2011.
- ³¹ BE, M. -M., et al., *Tables de Radionucléides ^{111}In , Monographie BIPM-5*, ISBN 92-822-2204-7, 2004.
- ³² SAHAGIA M., *Standartization of ^{99m}Tc* ,. Applied Radiation and Isotopes 64 (2006) 1234-1237.
- ³³ BE, M. -M., et al. *Tables de Radionucléides ^{99m}Tc , Monographie BIPM-5*, ISBN 92-822-2204-7, 2004.
- ³⁴ DIAS, M. S., Programa computacional *LINFIT* – Comunicação Pessoal, 1997.