AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS F-18 E In-111 E DETERMINAÇÃO DOS
COEFICIENTES DE CONVERSÃO INTERNA TOTAL PARA O In-111 EM SISTEMA DE
COINCIDÊNCIA POR SOFTWARE**

IZABELA TELES DE MATOS

**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
2014**

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

**Padronização dos radionuclídeos F-18 e In-111 e determinação dos coeficientes
de conversão interna total para o In-111 em sistema de coincidência por
software**

Izabela Teles de Matos

**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
2014

Aos meus pais, Izabel e Aparício

Aos meus irmãos, Vítor e André

Aos meus avós, Paulo Matos (*in memoriam*), Isabel Matos, Mauro Teles e Maria José.

AGRADECIMENTOS

À Dra. Marina Fallone Koskinas, minha orientadora que desenvolveu o trabalho junto comigo com muito empenho e dedicação. Seus ensinamentos são e serão muito importantes pra mim. Obrigada!

Ao Dr. Mauro da Silva Dias, pela orientação extra, pela paciência e pelas valiosas dicas que contribuíram para essa dissertação.

À Dra. Linda V. E. Caldas, pela preocupação e dedicação.

Aos meus pais, Izabel e Aparício, que entenderam quando eu resolvi sair de casa pra me aventurar pelo mundo em busca de mais conhecimento. E pelo intenso amor doado a cada dia. Amo vocês incondicionalmente!

Aos meus irmãos, Vítor e André, que com o amor e o carinho sempre me ajudaram a seguir em frente. Amo vocês!

Ao meu namorado, Mateus Hilário, que junto comigo cresceu tanto no lado sentimental quanto no lado profissional. Já são quase seis anos de ajuda mútua e muita dedicação. Te amo!

À minha irmã de pesquisa e eterna amiga, Tatiane Nascimento, por todas nossas conversas jogadas fora, pelos conselhos, pelas dicas, pelas risadas e por muitos cafés.

À minha querida amiga Camila Trindade, que sem ela meus dias não teriam sido os mesmos. Só nós sabemos que nossa amizade foi compartilhada com muita dedicação e carinho. Aprendi com ela que perdoar e ser perdoado são essenciais e necessários.

À minha futura colega de grupo e amiga Brianna, obrigada por ter me acolhido com braços e sorriso abertos. E que essa parceria/amizade continue por muitos anos.

À minha amiga/companheira Carolina Enge, por todas às vezes que precisei de colo e de um ombro amigo, você esteve lá. E por ter transformado a pensão em um lar. Você sempre estará do lado esquerdo do peito!

Aos meus amigos, Tallyson Alvarenga, Felipe Cintra, Eduardo Corrêa, Yklys Rodrigues, João Vinícius, Iberê Ribeiro, Maíra Nunes, Adélia Kakoi, Anna Raquel e Maria Eugênia. Obrigada pelos ensinamentos, pela ajuda e pelas risadas.

Aos amigos André Azevedo, Sabrina Hilário e ao pequeno João Pedro, pela ajuda desde o início do mestrado. Muito obrigada por todas as conversas e finais de semanas que sem eles não seria capaz de chegar até o fim.

À minha família Matos, em especial aos meus tios Lúcia, Rosa e Antônio, pela preocupação que tiveram não só com minha estadia em São Paulo, mas comigo desde sempre. Amo vocês!

À minha família Teles pelo amor e preocupação transmitidos todos os dias. Amo todos!

Ao Osmar Gonçalves e a Leila Cristina, por terem sido minha família e meu refúgio. Muito obrigada por tudo!

Aos meus cunhados, Sarah Helena, Vinícius Hilário, Leandra Hilário, Isadora Almeida e Maiara Moraes.

Aos MSc. Cláudio Domienikan, MSc. Fábio Toledo e Dr. Franco Brancaccio pela ajuda concedida sempre que necessário.

Aos técnicos do Laboratório de Medidas Nucleares, MSc. Yone Yamazaki e Oswaldo.

À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), pela concessão da bolsa de Mestrado.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, na pessoa do Sr. Superintendente Dr. José Carlos Bressiani, pela estrutura fornecida para a conclusão do trabalho e pelos auxílios as viagens para participação de congressos científicos.

“Todos os seus sonhos cabem num livro.”

(Aparício Teles – Meu pai)

“Sonhar é necessário, mas sempre com os pés no chão!”

(Izabel Matos – Minha mãe)

PADRONIZAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS F-18 E In-111 E DETERMINAÇÃO DOS COEFICIENTES DE CONVERSÃO INTERNA TOTAL PARA O In-111 EM SISTEMA DE COINCIDÊNCIA POR SOFTWARE

Izabela Teles de Matos

RESUMO

O presente trabalho descreve a metodologia para a padronização dos radionuclídeos ^{111}In e ^{18}F e a determinação dos Coeficientes de Conversão Interna do ^{111}In em Sistema de Coincidência por Software (SCS). O ^{111}In decai com uma meia-vida de 2,8 dias por processo de captura eletrônica seguido por emissão de raios gama concorrendo com os elétrons da conversão interna. O ^{18}F é um emissor de pósitrons de meia-vida curta (1,8 h), usado em Medicina Nuclear. As soluções radioativas usadas neste trabalho foram fornecidas pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN e as massas determinadas pela técnica do picnômetro. As medidas foram feitas utilizando o Sistema de Coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ constituído por um contador proporcional de geometria 4π a gás fluente e um semiconductor HPGe, acoplado a este sistema foi utilizado um sistema digital denominado de SCS com vantagem de obtenção da curva de extrapolação em uma única medida. A atividade do ^{111}In foi determinada pela técnica de extrapolação linear da eficiência do contador proporcional usando absorvedores externos em ambos os lados das fontes. Os valores dos Coeficientes de Conversão Interna Total foram determinados selecionando duas janelas de raios gama (175 keV e 245 keV). A atividade do ^{18}F foi determinada pela técnica de extrapolação linear da eficiência do contador proporcional utilizando a discriminação eletrônica. O código de simulação Monte Carlo ESQUEMA versão 9 foi usado para simular a extrapolação da curva da eficiência do ^{18}F , considerando as características do esquema de desintegração e todos os detalhes geométricos do sistema de detecção.

**STANDARDIZATION OF RADIONUCLIDES F-18 AND In-111 AND
DETERMINATION OF TOTAL INTERNAL COEFFICIENT OF In-111 IN A
SOFTWARE COINCIDENCE SYSTEM**

Izabela Teles de Matos

ABSTRACT

This paper describes the methodology for standardization of radionuclides ^{111}In and ^{18}F and the determination of Total Internal Coefficients of ^{111}In by means of a software coincidence system (SCS). The ^{111}In decays with a half-life of 2.8 days by the electron capture process followed by gamma rays emission competing with internal conversion electrons. The ^{18}F is a positron emitter with a short half-life (1.8 h), used in Nuclear Medicine. The radioactive solutions were provided by the Center for Radiopharmacy IPEN and the masses determined by pycnometer technique. The measurements were made using a Coincidence System $4\pi\beta\text{--}\gamma$ consisting of a proportional counter in 4π geometry fluent gas and a HPGe semiconductor, coupled to the system was used a digital system called SCS with the advantage of obtaining the extrapolation curve in a single measurement. The activity of ^{111}In was achieved by means of the linear extrapolation technique of the proportional counter efficiency using external absorbers on both sides of the sources. The values of the Total Internal Coefficients were determined selecting the two windows of gamma rays (175 keV and 245 keV). The activity of ^{18}F was determined by means of the linear extrapolation, using electronic discrimination. The Monte Carlo simulation code ESQUEMA version 9 was used to simulate the efficiency curve extrapolation of the ^{18}F , considering the characteristics of the system, the decay scheme of disintegration and all geometric details of the detection system.

SUMÁRIO

	Página
INTRODUÇÃO	1
OBJETIVOS ESPECÍFICOS	4
1. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	5
1.1. O decaimento radioativo.....	5
1.1.1. Radiação β	8
1.1.2. Radiação α	9
1.1.3. Radiação γ	9
1.2. Interações em processos de decaimento.....	10
1.2.1. Raio X Característico.....	10
1.2.2. Elétrons Auger.....	10
1.2.3. Conversão Interna.....	10
1.3. Interação da radiação com a matéria.....	11
1.3.1. Partículas Carregadas Leves.....	11
1.3.2. Radiação Eletromagnética.....	12
1.4. Detectores de Radiação.....	15
1.4.1. Detectores a gás.....	15
1.4.2. Semicondutores.....	17
1.4.3. Cintiladores.....	19
2. MÉTODO DE COINCIDÊNCIAS	22
2.1. Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.....	25
3. RADIONUCLÍDEOS EM ESTUDO	28

3.1. Características do ^{111}In	28
3.2. Padronização do ^{111}In no sistema de coincidência $4\pi(\text{X,A})-\gamma$	30
3.3. Características do ^{18}F	31
3.4. Padronização do ^{18}F no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$	32
4. METODOLOGIA	35
4.1. Preparação das Fontes.....	35
4.2. Arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta-\gamma$	39
4.2.1. Detector Proporcional $4\pi(\text{PC})$	41
4.2.2. Detector HPGe.....	42
4.3. Arranjo eletrônico do Sistema de Coincidência por <i>Software</i> (SCS)	44
4.4. Cálculo da atividade.....	46
4.5. Correções Aplicadas	53
4.5.1. Correção para tempo morto	53
4.5.2. Correção para radiação de fundo	53
4.5.3. Correção para decaimento radioativo	53
4.5.4. Correção para coincidências acidentais ou espúrias	54
4.6. Determinação da curva de extrapolação	55
4.7. Simulação pelo método de Monte Carlo.....	55
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES	58
5.1. Medida do ^{111}In no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$	58
5.2. Determinação dos Coeficientes de Conversão Interna Total do ^{111}In	63
5.3. Medida do ^{18}F no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$ e simulação pelo método de Monte Carlo	65

6. CONCLUSÃO	74
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	76

LISTA DE TABELAS

TABELA 3.1 – Radiações do decaimento do ^{111}In , energias e intensidades.....	29
TABELA 3.2 – Radiações do decaimento do ^{18}F , energias e intensidades	32
TABELA 5.1 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade ($N_{4\pi}N_\gamma/N_c$) para a janela gama de 171 keV obtida para o ^{111}In	59
TABELA 5.2 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade ($N_{4\pi}N_\gamma/N_c$) para a janela gama de 245 keV obtida para o ^{111}In	60
TABELA 5.3 – Parâmetros de ajuste obtidos para as duas janelas γ selecionadas, por meio de ajuste dos mínimos quadrados, com a matriz de correlação correspondente.....	62
TABELA 5.4 – Incertezas típicas parciais na atividade, em percentagem ($k=1$).....	63
TABELA 5.5 – Tabela com os valores do parâmetro C, os valores das eficiências de detecção do detector beta para a radiação gama calculados ($\epsilon_{\beta\gamma}$) e os valores das eficiências dos elétrons de conversão (ϵ_{ec}) para o cálculo dos Coeficientes de Conversão Interna Total (α_T) para 171 keV e 245 keV do ^{111}In	64
TABELA 5.6 – Os resultados dos coeficientes de conversão interna total das transições 171 keV e 245 keV, em comparação com a literatura	65
TABELA 5.7 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 1 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.....	66
TABELA 5.8 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 2 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.....	67
TABELA 5.9 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 3 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.....	68

TABELA 5.10 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 4 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.....	69
TABELA 5.11 – Incertezas típicas parciais na atividade, em percentagem ($k=1$).....	70
TABELA 5.12 – Valores do nível de discriminação, ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$, atividade ($N_\beta N_\gamma/N_c$) e sua incerteza para a simulação de Monte Carlo.....	71
TABELA 5.13 – Valores das atividades de cada fonte de ^{18}F e atividade média com respectivas incertezas.....	72

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1.1 - Decaimento exponencial de número de átomos pelo tempo	6
FIGURA 1.2 - Gráfico de energia e número atômico das áreas predominantes dos três tipos de interação da radiação com a matéria	13
FIGURA 1.3 - Gráfico da tensão aplicada pela amplitude do pulso proveniente do detector a gás para diferentes regiões de operação	16
FIGURA 1.4 - Representação da diferença do nível de energia para os materiais isolantes e semicondutores	18
FIGURA 1.5 - Tubo fotomultiplicador com detalhes para as partes internas com função de amplificar o sinal	20
FIGURA 2.1 - Esquema de decaimento para um emissor genérico A_ZX	22
FIGURA 2.2 - Diagrama de bloco do sistema de coincidência	22
FIGURA 2.3 - Esquema de decaimento de um emissor beta seguida da emissão gama/elétrons de conversão	24
FIGURA 3.1 - Esquema de decaimento do ${}^{111}\text{In}$	28
FIGURA 3.2 - Esquema de decaimento do ${}^{18}\text{F}$	32
FIGURA 4.1 - Arandelas com filmes de Collodion metalizadas com ouro	36
FIGURA 4.2 - Sistema para metalização de fontes	36
FIGURA 4.3 - Picnômetro utilizado para a determinação das massas das fontes	37
FIGURA 4.4 - Balança Microanalítica digital modelo Sartorius MC 21S	37
FIGURA 4.5 - Filmes de Collodion (absorvedores externos) para a variação da eficiência	38

FIGURA 4.6 - Arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta-\gamma$ do LMN, onde a região 1 representa o cintilador de NaI(Tl), a região 2 o detector proporcional a gás fluente com geometria 4π e a região 3 o detector semiconductor HPGe	40
FIGURA 4.7 - Vista em corte transversal do detector proporcional do LMN	41
FIGURA 4.8 - Placa deslizante do detector proporcional 4π do LMN com o suporte para a fonte	42
FIGURA 4.9 - Gráfico de comparação dos picos de resolução para os detectores semicondutores e cintiladores	43
FIGURA 4.10 - Detector semiconductor HPGe do LMN utilizado no presente trabalho.....	44
FIGURA 4.11 - Painel de conexão e tela do programa de aquisição em LabVIEW	45
FIGURA 4.12 - Diagrama de bloco do Sistema de Coincidência por Software (SCS).....	46
FIGURA 4.13 - Espectro do Canal Beta obtido pelo sistema SCS para o ^{111}In	47
FIGURA 4.14 - Espectro Gama obtido pelo sistema SCS, indicando as janelas gamas selecionadas do ^{111}In	48
FIGURA 4.15 - Espectro Coincidência obtido pelo sistema SCS, indicando as contagens totais dos eventos detectados beta, gama e das coincidências entre os eventos beta e os eventos gama na janela gama selecionada.	49
FIGURA 4.16 – Arquivo .scc típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe.....	50
FIGURA 4.17 - Arquivo .bat típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe para as janelas gama de 171 keV e 245 keV do ^{111}In	51
FIGURA 4.18 - Arquivo .out típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe	52
FIGURA 4.19 – Geometria do arranjo experimental para o sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ tríplice do LMN considerada com o código VISED-MCNP5	57
FIGURA 5.1 - Curva de extrapolação $N_{4\pi}N_{\gamma}/N_c$ em função de $(1 - N_c / N_{\gamma}) / (N_c / N_{\gamma})$ para as duas janelas gama do ^{111}In	61

FIGURA 5.2 - Curva de extrapolação $N_\beta N_\gamma / N_c$ em função de $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$ para a janela gama de 511 keV do ^{18}F comparado com a simulação de Monte Carlo..... 73

INTRODUÇÃO

Desde a descoberta da radioatividade ocorrida no século passado por Marie Curie surgiu a necessidade de sua quantificação. Nas décadas de 60 e 70 com o desenvolvimento dos detectores de radiação e da eletrônica utilizada nos sistemas de medidas, o ramo da metrologia de radionuclídeos apresentou um grande avanço (BOBIN, 2007).

Nessa época, foram desenvolvidos métodos de medida absoluta de atividade, a qual não é uma medida isenta de erros, mas uma medida que não depende de outro sistema nem do conhecimento prévio das eficiências de detecção e dos parâmetros do esquema de decaimento (MOURA, 1969).

Atualmente estes métodos estão voltados para a padronização de radionuclídeos padrões em sistemas primários, que aliada às medidas em sistemas secundários, permite a determinação dos parâmetros nucleares, tais como: intensidade gama e coeficientes de conversão interna. Essa padronização tem uma grande importância para o uso da radioatividade tanto na calibração de sistemas de medida como no uso de radionuclídeos em Medicina Nuclear, uma vez que a calibração de sistemas secundários e terciários depende diretamente destes dados para obtenção dos seus resultados.

O conhecimento da atividade e de seus parâmetros de decaimento determinados com boa exatidão está relacionado à qualidade dos exames de diagnóstico de doenças oncológicas. Isto porque, altos valores da atividade podem saturar a capacidade de detecção e processamento dos pulsos eletrônicos, assim como um valor menor poderá fornecer imagem insuficiente para o diagnóstico, além de aumentar o tempo de exame, impossibilitando a formação de imagem de boa qualidade e assim, comprometer os objetivos do procedimento (TAUHATA et al., 2008).

A proposta deste trabalho é a padronização do ^{111}In e do ^{18}F , radionuclídeos utilizados em Medicina Nuclear, e a determinação dos Coeficientes de Conversão Interna Total do ^{111}In utilizando o Sistema de Coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Esse sistema é composto por três detectores, um contador proporcional a gás fluente em geometria 4π , para a detecção de elétrons Auger, raio X ou beta, acoplado a um cintilador de NaI(Tl) e a um HPGe (*high-purity germanium*), ambos para a detecção da radiação gama.

Para a determinação da atividade absoluta sem o conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração e eficiências de detecção, utilizou-se neste trabalho a Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.

Acoplado ao Sistema de Coincidências foi utilizado um sistema digital, desenvolvido no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN denominado Sistema de Coincidências por Software (SCS) (TOLEDO, 2008), que ocasionou um grande avanço na padronização de radionuclídeos com meias-vidas curtas tais como o ^{99m}Tc (BRITO et al., 2012) e o ^{68}Ga (KOSKINAS et al., 2012).

As vantagens da utilização do sistema SCS são: obtenção da curva de extrapolação em uma única medida, utilizar um número menor de módulos eletrônicos em comparação ao sistema TAC (módulo conversor de tempo em amplitude de pulso) (BACCARELLI et al., 2008), armazenamento dos dados em disco permitindo uma análise posterior e as alterações nos parâmetros de análise feitas a posteriori por software (TOLEDO et al., 2008).

O cálculo da atividade radioativa foi feito por meio do programa SCTAC6 (DIAS, 2010), desenvolvido no LMN, que permite a análise do espectro gama de modo similar ao usado em espectrometria gama, subtraindo as contagens interferentes Compton no entorno do foto pico de interesse.

As incertezas na atividade das fontes e nos parâmetros do ajuste foram determinadas utilizando-se a metodologia de análise de covariâncias (GERALDO e SMITH, 1989) por meio do programa LINFIT (DIAS, 1999).

Na padronização do ^{18}F foi utilizado um programa denominado ESQUEMA (DIAS et al., 2006) que por meio da técnica de Monte Carlo simula todo o processo de decaimento e detecção do radionuclídeo no Sistema de Coincidências, auxiliando na obtenção da atividade da solução.

Esta dissertação foi dividida em seis capítulos que serão detalhados a seguir.

Os fundamentos teóricos são apresentados no Capítulo 1, mostrando os tipos de decaimento radioativo, interações em processos de decaimento e a interação da radiação eletromagnética com a matéria e descrição dos detectores de radiação.

O Capítulo 2 apresenta o Método de Coincidência com um subtópico para a Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.

As principais características e as padronizações do ^{111}In e do ^{18}F no sistema de coincidência são descritas no Capítulo 3.

No Capítulo 4 é descrita a metodologia dividida em: Preparação das Fontes, Arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$, Arranjo eletrônico do Sistema de Coincidência por *Software* (SCS), Cálculo da atividade, Correções Aplicadas, Determinação da curva de extrapolação e o Método de Monte Carlo.

A análise dos resultados e a conclusão são apresentadas no capítulo 5 e capítulo 6, respectivamente.

OBJETIVOS ESPECÍFICOS

- i. Padronização do ^{111}In utilizando o SCS empregando um sistema de coincidência $4\pi(\text{X,A})-\gamma$ com um detector proporcional com geometria 4π acoplado a um detector semicondutor HPGe;
- ii. Determinação dos coeficientes de conversão interna total de duas transições gama (171 keV e 245 keV) do ^{111}In por meio da aplicação da técnica de extrapolação linear da eficiência;
- iii. Padronização do ^{18}F utilizando o SCS empregando um sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ com um detector proporcional com geometria 4π acoplado a um detector semicondutor HPGe;
- iv. Comparação da simulação pelo método de Monte Carlo com as medidas experimentais do ^{18}F obtidas no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$.

Capítulo 1

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Este capítulo reúne temas e conceitos básicos da Física Nuclear com uma abordagem simples e resumida com o intuito de criar uma conexão entre os aspectos gerais da radiação e a abordagem do conteúdo do presente trabalho, sendo eles:

- i. Processos de decaimento radioativo
- ii. Interações em processos de decaimento
- iii. Interação da radiação com a matéria
- iv. Detectores de radiação

1.1. O decaimento radioativo

Os núcleos instáveis, freqüentemente chamados de radionuclídeos, possuem características químicas como: número de massa (A), número atômico (Z) e número de nêutrons (A-Z), representado por A_ZX . Para que este núcleo se torne estável ocorrem os processos de decaimento radioativo.

O decaimento radioativo ocorre quando num núcleo instável, excesso de prótons ou de nêutrons, procura sua estabilidade emitindo energia em forma de radiação. Essa radiação emitida pode-se propagar por meio de partículas ou por meio de ondas eletromagnéticas (OKUNO e YOSHIMURA, 2010).

A emissão desta radiação obedece à lei do decaimento radioativo, representada pela equação 1.4:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1.1)$$

$$\frac{dN}{N} = -\lambda dt \quad (1.2)$$

Integrando, temos:

$$\ln N = -\lambda t \quad (1.3)$$

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.4)$$

Onde:

N_0 → Quantidade de átomos inicial do nuclídeo no tempo igual a zero;

$N(t)$ → Quantidade de átomos do nuclídeo num intervalo de tempo t ;

λ → Constante de desintegração;

t → Tempo.

Pode-se observar na figura 1.1, que representa o decaimento radioativo, que o número de átomos (N) é uma grandeza que diminui exponencialmente com o tempo.

FIGURA 1.1 - Decaimento exponencial de número de átomos pelo tempo.

Para que se encontre o tempo de Meia-Vida ($T_{1/2}$), intervalo de tempo necessário para que N_0 reduza à metade, considera-se na equação 1.4, $t = T_{1/2}$ e $N = \frac{N_0}{2}$,

que deste modo resulta em:

$$\frac{N_0}{2} = N_0 e^{-\lambda T_{1/2}} \quad (1.5)$$

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.6)$$

A atividade de um radionuclídeo é definida pelo número de desintegrações nucleares que ocorrem em certo intervalo de tempo e pode-se expressá-la por meio de uma fórmula semelhante à do decaimento radioativo, pois a atividade apresenta uma proporcionalidade com o número de átomos excitados presentes no elemento radioativo.

Considerando-se:

$$A = \frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1.7)$$

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.8)$$

A fórmula para o decaimento da atividade é representada por meio da equação 1.9:

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.9)$$

Onde:

A_0 → Atividade inicial do nuclídeo no tempo igual a zero;

$A(t)$ → Atividade do nuclídeo num tempo t ;

λ → Constante de desintegração;

t → Tempo.

Deste modo pode-se concluir que a atividade (A) também é uma grandeza que diminui exponencialmente com o tempo.

A unidade padrão da atividade é o Becquerel (Bq), onde:

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

Unidade antiga: 1 Curie (Ci)

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

Os tipos de processos de decaimento radioativo são: decaimento β , decaimento α e decaimento γ . Podendo também ocorrer interações durante os processos de decaimento, como: Raio X Característico, Elétrons Auger e a Conversão Interna.

1.1.1. Radiação β

A emissão da radiação β acontece em decorrência da diferença entre o número de prótons e o número de nêutrons no núcleo, ocorrendo à emissão espontânea de um elétron ou de um pósitron. Dependendo do tipo de partícula em excesso no núcleo, acontecerá a emissão de um elétron (β^-), emissão de um pósitron (β^+) ou captura eletrônica.

Decaimento β^-

O decaimento β^- ocorre quando um núcleo possui um excesso de nêutrons em relação ao número de prótons. O núcleo, buscando sua estabilidade, converte o nêutron em um próton emitindo um β^- e um antineutrino ($\bar{\nu}$). O antineutrino compartilha com o β^- a energia de desintegração do núcleo liberada durante o processo de decaimento.

Decaimento β^+

Assim como no decaimento β^- , o núcleo também possui um excesso. A quantidade de prótons em relação ao número de nêutrons é maior. O núcleo buscando sua estabilidade converte o próton em um nêutron, emitindo um β^+ e um neutrino (ν). O neutrino compartilha com o β^+ a energia de desintegração do núcleo liberada durante o processo de decaimento.

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + {}^0_1 \beta^+ + \nu \quad (1.11)$$

Esse decaimento somente acontecerá se a diferença entre as massas atômicas do núcleo pai e do filho for maior do que 1,022 MeV (EISBERG; RESNICK, 1979). Se essa condição não for satisfatória, o processo de decaimento que ocorrerá será o de captura eletrônica.

Captura Eletrônica (CE)

Como no decaimento β^+ , o processo de CE acontece em decorrência ao excesso de número de prótons no núcleo. Deste modo, o núcleo captura um elétron da camada mais interna no átomo para converter um próton em um nêutron, emitindo um neutrino (ν) para se tornar estável. A captura eletrônica é seguida pela emissão de raio X característico.

$${}^A_Z X + {}^0_{-1} e \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + \nu \quad (1.12)$$

1.1.2. Radiação α

A emissão da radiação α ocorre espontaneamente por questões favoráveis de energia entre a massa do núcleo pai, a massa do núcleo filho e a massa da partícula alfa.

O decaimento alfa ocorre em núcleos de número atômico alto ($Z \geq 83$), nesse processo um núcleo instável decai para um núcleo com um número atômico duas unidades menores e um número de massa quatro unidades menores, ou seja, a partícula alfa é composta da mesma estrutura de núcleos do átomo de hélio (${}^4_2\text{He}$) (EISBERG e RESNICK, 1979).

$${}^A_Z X \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} Y + {}^4_2\text{He} \quad (1.13)$$

1.1.3. Radiação γ

Mesmo após um decaimento β ou α , se o núcleo permanecer excitado, a energia da dexcitação será liberada em forma de fóton (raio γ). Esse fóton terá o valor de energia ($h\nu$) igual à diferença entre dois níveis de energia nuclear.

O símbolo ${}^A_ZX^*$ representa o núcleo no estado excitado (metaestável).

1.2. Interações em processos de decaimento

Durante os processos de decaimento do núcleo, descritos anteriormente, poderão ocorrer interações das radiações primárias com a eletrosfera emitindo outros tipos de radiações, que são as secundárias, como: Raios X Característico, Elétrons Auger e Conversão Interna.

1.2.1. Raio X Característico

A emissão de raio X característico ocorre no processo de captura eletrônica, onde elétrons das camadas mais externas ocupam lacunas da camada interior deixada pelo elétron capturado dando origem à uma avalanche de fótons de raios X.

1.2.2. Elétrons Auger

Este processo de emissão compete com a emissão de fótons de raios X, podendo o elétron ser ejetado com energia igual a do raio X menos sua energia de ligação ao átomo. A esse elétron ejetado dá-se o nome de Elétron Auger (OKUNO e YOSHIMURA, 2010).

1.2.3. Conversão Interna

A Conversão Interna é o processo em que um dos elétrons atômicos internos da órbita K, ou possivelmente L e M, é emitido em vez do raio γ . O elétron é de energia igual a do raio γ menos a energia de ligação ao átomo.

Coefficiente de Conversão Interna Total

A relação entre o número de elétrons de conversão, N_e e o número de fótons, N_γ , de uma determinada transição é chamada de Coeficiente de Conversão Interna (α), ou seja:

$$\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma} \quad (1.15)$$

O Coeficiente de Conversão Interna Total (α_T) é igual à soma dos coeficientes de conversão interna das várias camadas ou subcamadas atômicas:

$$\alpha = \sum_i \alpha_i \quad (1.16)$$

Para $i = K, L, M...$

Onde:

$$\alpha_T = \alpha_i \frac{N_e}{N_\gamma} i \quad (1.17)$$

1.3. Interação da radiação com a matéria

A radiação, sendo ela de natureza corpuscular e/ou ondulatória, interage com a matéria de diferentes maneiras. A interação acontece de acordo com o tipo de radiação, composição do meio e energia da radiação (YOSHIMURA, 2009).

Neste subtópico serão descritas a interação das partículas carregadas leves e da radiação eletromagnética com a matéria, devido ao tipo de decaimento dos radionuclídeos utilizados no presente trabalho.

1.3.1. Partículas Carregadas Leves

As partículas carregadas leves compõem o grupo dos elétrons e dos pósitrons, mais conhecidas como partículas betas. A interação se dá por colisões coulombianas com os elétrons dos átomos que constituem o material absorvedor, gerando íons no meio no qual se propaga. As partículas betas descrevem um caminho tortuoso no meio de propagação, uma vez que, as massas das partículas envolvidas na interação são iguais. Algumas vezes, a interação pode ocorrer com o campo coulombiano do núcleo (KNOLL, 2010).

De acordo com a teoria clássica do eletromagnetismo, partículas carregadas quando aceleradas emitem radiação, fenômeno este denominado bremsstrahlung, portanto a transferência linear de energia de uma partícula beta é dada por:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{total} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{coul} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{bremms} \quad (1.18)$$

O último termo corresponde à radiação de bremsstrahlung que só se torna significativo para partículas betas de altas energias em absorvedores de alto número atômico.

1.3.2. Radiação Eletromagnética

A radiação indiretamente ionizante é caracterizada pela interação na matéria por meio da radiação sem carga elétrica (fótons de raios X e γ) sendo absorvida ou espalhada. Nesse caso, segundo Einstein, a radiação está quantizada em pacotes de energia chamados de fóton (EISBERG e RESNICK, 1979). Deste modo, é levada em consideração a forma corpuscular da radiação.

Onde:

$$E = h\nu \quad (1.19)$$

Os principais processos de interação da radiação eletromagnética com a matéria são: Efeito Fotoelétrico, Efeito Compton e Produção de Pares.

Essas interações dependem da energia da radiação, da densidade do material e do número atômico (EVANS, 1955). A figura 1.2 representa essa dependência de acordo com a área da predominância de cada interação.

FIGURA 1.2 - Gráfico de energia e número atômico das áreas predominantes dos três tipos de interação da radiação com a matéria (KNOLL, 2010).

Efeito Fotoelétrico

Quando um fóton interage num material, desaparece completamente e em seu lugar um fotoelétron é ejetado da camada mais interna por meio de transferência de energia produzindo um íon excitado, esse fenômeno chama-se Efeito Fotoelétrico (KNOLL, 2010).

O processo de desexcitação do meio acontece por emissão de um ou mais fótons.

A energia cinética do fotoelétron pode ser calculada pela equação 1.20:

$$K = h\nu - B \quad (1.20)$$

Onde:

$K \rightarrow$ Energia cinética do fotoelétron;

$h\nu \rightarrow$ Valor da energia do fóton incidente;

$B \rightarrow$ Trabalho necessário para remover o elétron do meio.

Efeito Compton

No Efeito Compton o fóton interage com um elétron da camada mais externa (livre em repouso) provocando um espalhamento, aumentando o comprimento de onda do fóton devido à transferência de energia no choque com o elétron. Essa energia do fóton inicial é dividida entre o elétron e o fóton espalhado.

A equação de Compton é descrita na equação 1.21 como:

$$\Delta\lambda = \lambda_1 - \lambda_0 = \lambda_c (1 - \cos\theta) \quad (1.21)$$

Onde:

$\lambda_c \rightarrow$ Comprimento de onda Compton;

$\lambda_1 \rightarrow$ Comprimento de onda do fóton espalhado;

$\lambda_0 \rightarrow$ Comprimento de onda do fóton inicial;

$\theta \rightarrow$ Ângulo de espalhamento do fóton em relação a sua trajetória inicial.

Produção de pares

A produção de pares ocorre quando um fóton de energia equivalente ou superior a duas massas de repouso do elétron (1,022 MeV) interage com o campo Coulombiano do núcleo transferindo toda a sua energia na interação dando origem a um par elétron-pósitron. Neste fenômeno há conservação de energia em massa de repouso e energia cinética.

A equação de conservação de energia para a produção de pares é:

$$E = K_{\beta^-} + K_{\beta^+} + 2m_0c^2 \quad (1.22)$$

Onde:

$E \rightarrow$ Energia do fóton incidente;

K_{β^-} → Energia cinética do elétron;

K_{β^+} → Energia cinética do pósitron;

m_0c^2 → Massa de repouso.

1.4. Detectores de Radiação

Para medir e caracterizar as radiações provenientes de um meio radioativo faz-se uso dos detectores de radiação.

Para que o detector seja capaz de medir a radiação, é necessário que a radiação interaja com meio sensível. Além do meio sensível é necessário ter um sistema que processe o sinal proveniente do detector e transforme este sinal em um valor relacionado a uma grandeza de medição dessa radiação.

No entanto, existem diferentes tipos de detectores e com particularidades em suas propriedades, como detecção de diferentes tipos de radiação, por exemplo. São eles: os detectores a gás, os detectores semicondutores e os detectores cintiladores.

1.4.1. Detectores a gás

Os detectores a gás caracterizam-se pelo uso do gás como meio incidente da radiação. Basicamente esses detectores são constituídos por um catodo (eletrodo negativo), um anodo central (eletrodo positivo) e uma eletrônica associada para o registro do sinal proveniente da interação da radiação com o gás.

Quando a partícula ou fóton interage com o gás são liberados pares de íons no interior do detector, esses íons são coletados pelo anodo devido a uma diferença de potencial aplicada, gerando uma corrente que é o sinal responsável pelo valor da energia depositada pela radiação no meio sensível (KNOLL, 2010).

Existem três principais tipos de detectores a gás que são eles: câmara de ionização, detector proporcional e detector Geiger-Müller.

Na figura 1.3 é apresentado um gráfico de tensão aplicada por altura de pulso para as diferentes áreas de operação de cada tipo de detector.

FIGURA 1.3 - Gráfico da tensão aplicada pela amplitude do pulso proveniente do detector a gás para diferentes regiões de operação (KNOLL, 2010).

Câmaras de ionização

A região de saturação iônica na figura 1.3 corresponde à região de operação das câmaras de ionização. Esse tipo de detector é utilizado como um dos métodos mais precisos para determinação tanto da dose absorvida quanto da exposição.

O funcionamento se dá pela coleta de todos os elétrons (íons primários negativos) a partir de um determinado valor de tensão produzidos pela radiação incidente. Portanto, um aumento na voltagem não é mais acompanhado por um aumento de corrente (ou amplitude de pulso), por isso a existência do patamar nessa região. A resposta obtida no sistema é proporcional ao número de pares de íons produzidos pela radiação incidente, portanto, à sua energia, como pode ser observado pelas diferenças nas duas curvas (1 MeV e 2 MeV). O sinal medido pelas câmaras de ionização é normalmente muito pequeno e muitas vezes são amplificados.

Detectores proporcionais

Aumentando a voltagem, atinge-se o limite onde se inicia o processo de multiplicação de íons, referente à região proporcional na figura 1.3. O aumento de voltagem faz com que os elétrons adquiram maior velocidade, portanto, maior energia cinética, e passem a produzir ionizações secundárias. Os íons secundários, por sua vez, também podem gerar novos íons, e, assim, sucessivamente. Este processo é denominado de “Avalanche de Townsend”: Para cada elétron primário, são produzidos muitos elétrons secundários, aumentando a amplitude do pulso. Nesta região, onde operam os detectores proporcionais, a carga coletada é proporcional ao número de íons primários.

Detectores Geiger-Müller

A última região apresentada na figura 1.3 é onde operam os detectores Geiger-Müller. Nesta região, o processo é auto-limitante e a amplitude do pulso é a mesma, não refletindo nenhuma característica da radiação incidente. O aumento da voltagem além da região de proporcionalidade limitada faz com que os elétrons sejam acelerados ao ponto de gerarem uma ionização em cascata no gás que ocasiona um acúmulo grande de íons positivos no anodo que altera o campo elétrico, interrompendo o processo de multiplicação. Há utilização de um gás de *quenching* para auxiliar na extinção da descarga produzida pelo acúmulo de carga, impedindo que continue por muito tempo. O número de pares de íons criados, nesta região, será sempre da mesma ordem, independentemente do número de pares de íons criados originalmente.

1.4.2. Semicondutores

Os detectores semicondutores caracterizam-se pela largura entre a banda proibida e a banda de valência ser menor do que nos isolantes, desse modo é possível criar pares de elétrons-buracos mais facilmente.

A figura 1.4 representa a diferença entre as larguras das bandas para os isolantes e os semicondutores.

FIGURA 1.4 - Representação da diferença do nível de energia para os materiais isolantes e semicondutores.

O princípio de funcionamento desses detectores ocorre quando a energia da radiação incidente é absorvida, elétrons da banda de valência migram para a banda de condução formando pares de elétrons livres e buracos. Sob efeito de uma diferença de potencial, os elétrons e os buracos (comportam-se como uma carga positiva) deslocam-se em direções opostas.

Normalmente os materiais utilizados nestes detectores de radiação são dopados com impurezas apropriadas, para gerarem excesso de carga e são constituídos pela junção desses materiais dopados, mas conhecido como: Junção p-n.

Tipo-p → Receptores de elétrons (dopante com valência 3)*;

Tipo-n → Doadores de elétrons (dopante com valência 5)*.

*Levando em consideração o silício e o germânio que são tetravalentes.

A região próxima da junção fica “livre de cargas” porque a tendência natural é que ocorra a neutralização dos elétrons e buracos.

Os principais detectores semicondutores são de dois tipos diferentes, os detectores de junção p-n e os intrínsecos, geralmente feitos de germânio e de silício (LILLEY, 2004).

Uma grande vantagem do detector semicondutor é seu alto poder de resolução, pulsos rápidos e altura de pulso proporcional à energia perdida.

A resolução de energia global alcançado em um sistema de germânio é normalmente determinada por uma combinação de três fatores: a dispersão estatística inerente ao número de portadores de carga, variações na eficiência de coleta de carga, e as contribuições de ruído eletrônico (KNOLL, 2010).

No funcionamento do HPGe, os fótons emitidos pela fonte radioativa interagem com o cristal semiconductor produzindo pares elétron-lacuna na camada reduzida de junção p-n do mesmo. Os elétrons e as lacunas são coletados em terminais opostos por causa da voltagem através da junção, da mesma forma que elétrons e íons são coletados em detectores a gás (PRICE, 1964; KOKTA, 1973). Essa coleta gera pulsos cuja amplitude é proporcional à energia liberada na interação.

O HPGe necessita de refrigeração (nitrogênio líquido) quando em operação, mas pode ser mantido em temperatura ambiente por dias sem alta tensão aplicada. É um dos mais utilizados em espectrometria gama para a medida de emissores gama com baixa atividade e padronização de radionuclídeos em uma grande faixa de energia (TAUHATA et al., 2008).

1.4.3. Cintiladores

Como nos outros tipos de detectores, os cintiladores também possuem um meio sensível para a interação da radiação onde acontece a excitação às moléculas do material. Esses detectores operam medindo a radiação que é emitida quando as moléculas excitadas retornam ao estado fundamental.

Um cintilador é composto, além do meio sensível, por um tubo fotomultiplicador que amplifica o sinal luminoso e uma eletrônica associada para a coleta do sinal de saída.

O mecanismo de funcionamento de um tubo fotomultiplicador baseia-se na amplificação do sinal da detecção da radiação, pois para cada fóton incidente são liberadas algumas centenas de elétrons. O fotocatodo funciona convertendo os fótons de luz incidente, provenientes do cintilador, em fotoelétrons, que são liberados no interior da fotomultiplicadora. Os dinodos servem para multiplicar o número de elétrons provenientes do fotocatodo preservando a proporcionalidade do número de elétrons iniciais. O processo

continua sucessivamente até que os elétrons cheguem ao anodo e sejam coletados gerando um sinal (KNOLL, 2010).

Na figura 1.5 é possível observar a estrutura interna de um tubo fotomultiplicador.

FIGURA 1.5 - Tubo fotomultiplicador com detalhes para as partes internas com função de amplificar o sinal (KNOLL, 2010).

Existem vários tipos de materiais utilizados como meio detector, sendo os principais o inorgânico, o orgânico e os gases nobres.

Em relação ao material inorgânico, não pode ser um cristal puro, pois não apresenta características favoráveis de um bom cintilador. Isto porque a profundidade da banda proibida é, conseqüentemente, a energia do fóton emitido, é muito grande fazendo com que o comprimento de onda dos fótons não esteja na região do visível, e a ausência de níveis de energia intermediários faz com que o intervalo de absorção de fótons seja muito similar ao de emissão.

Com esses aspectos bem definidos para um material inorgânico puro é necessária a adição de um dopante (impureza) para que sejam criados níveis de energia intermediários no interior da banda proibida para a energia do fóton de cintilação diminuir.

Alguns exemplos de cristais inorgânicos utilizados em detectores a cintilação são: Iodeto de sódio - NaI(Tl), Sulfeto de Zinco - ZnS(Ag) e Iodeto de Césio - CsI(Tl) e CsI(Na).

Uma das principais características de um cintilador é a alta eficiência de conversão da energia incidente em luz detectável.

Capítulo 2

MÉTODO DE COINCIDÊNCIAS

O método de coincidências é aplicado à radionuclídeos que decaem por duas ou mais tipos de radiações, como beta-gama, alfa-gama, gama-gama. O princípio do método consiste no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação e na determinação dos eventos coincidentes, isto é, detectados simultaneamente nos respectivos contadores.

Considerando-se uma fonte puntiforme de um emissor β - γ genérico, com esquema de decaimento em que há emissão beta seguida da emissão gama (figura 2.1) pode-se determinar a taxa de desintegração desta fonte com base apenas nas taxas de contagens observadas, sem a necessidade do conhecimento das eficiências de detecção nem tão pouco dos parâmetros do esquema de desintegração. A figura 2.2 representa o diagrama de bloco do sistema de coincidência.

FIGURA 2.1 - Esquema de decaimento para um emissor genérico ${}^A_Z X$.

FIGURA 2.2 - Diagrama de bloco do sistema de coincidência.

As equações que regem o método são mostradas a seguir:

$$N_{\beta} = N_0 \varepsilon_{\beta} \quad (2.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \varepsilon_{\gamma} \quad (2.2)$$

$$N_c = N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (2.3)$$

Onde:

$N_0 \rightarrow$ Taxa de desintegração;

$N_{\beta} \rightarrow$ Taxa de contagens na via beta;

$N_{\gamma} \rightarrow$ Taxa de contagens na via gama;

$N_c \rightarrow$ Taxa de contagens na via coincidência;

$\varepsilon_{\beta} \rightarrow$ Eficiência de detecção da via beta;

$\varepsilon_{\gamma} \rightarrow$ Eficiência de detecção da via gama.

Multiplicando-se as equações (2.1) e (2.2) e dividindo pela (2.3), tem-se:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \quad (2.4)$$

Com:

$$\frac{N_c}{N_{\gamma}} = \varepsilon_{\beta} \quad (2.5)$$

Porém, quando um dos detectores é sensível a mais de um tipo de radiação e quando os radionuclídeos decaem pela emissão de elétrons de conversão interna competindo com a radiação gama, esses elétrons e os gamas podem ser detectados no detector beta.

Na figura 2.3 é demonstrado o esquema de decaimento de um emissor beta seguido pela emissão de radiação gama/elétrons de conversão.

FIGURA 2.3 - Esquema de decaimento de um emissor beta seguida da emissão gama/elétrons de conversão.

As equações 2.1, 2.2 e 2.3 são alteradas e a taxa de desintegração passa a depender do conhecimento prévio dos parâmetros do esquema de desintegração e das eficiências de detecção.

$$N_{\beta} = N_0 \left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right) \right] \quad (2.6)$$

$$N_{\gamma} = N_0 (\varepsilon'_{\gamma}) \quad (2.7)$$

$$N_c = N_0 [\varepsilon_{\beta} \varepsilon'_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c] \quad (2.8)$$

A equação 2.4 passa a ser escrita como:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \frac{\left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right) \right] [\varepsilon'_{\gamma}]}{[\varepsilon_{\beta} \varepsilon'_{\gamma} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c]} \quad (2.9)$$

$$\text{Com } \varepsilon'_{\gamma} = \frac{\varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha}$$

Onde:

$\varepsilon_\beta \rightarrow$ Eficiência para o ramo beta;

$\varepsilon'_\gamma \rightarrow$ Eficiência para o gama correspondente ao ramo beta;

$\alpha_T \rightarrow$ Coeficiente de conversão interna total correspondente ao ramo beta;

$\varepsilon_{cr} \rightarrow$ Eficiência para contagens de coincidência gama-gama;

$\varepsilon_{ec} \rightarrow$ Eficiência do detector beta para elétrons de conversão;

$\varepsilon_{\beta\gamma} \rightarrow$ Eficiência do detector beta para a radiação gama.

Neste caso, a taxa de desintegração não pode mais ser determinada em função das contagens observadas, uma vez que os elétrons provenientes do processo de conversão interna e os gamas podem ser detectados no detector beta. Desse modo, a equação 2.9 contraria o princípio do método.

Para solucionar o problema que inviabilizaria o método de coincidência, uma vez que o uso de parâmetros do esquema e a necessidade do conhecimento prévio das eficiências tornariam o método não mais um método primário, utiliza-se a Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência.

2.1. Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência

Para a Técnica de Extrapolação Linear da Eficiência, Baerg e Campion (BAERG, 1967; CAMPION, 1959) estabeleceram que a determinação de N_0 só será possível se pudermos estabelecer uma relação funcional entre N_β e o parâmetro de eficiência N_c/N_γ tal que $N_\beta \rightarrow N_0$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$.

Portanto N_β é simplesmente uma função F do parâmetro de eficiência N_c/N_γ tal que:

$$N_\beta = N_0 F\left(\frac{N_c}{N_\gamma}\right) \quad (2.10)$$

Onde $F \rightarrow 1$ quando $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$. Esta é a fórmula de coincidências generalizada (BAERG, 1973).

A fórmula de coincidência generalizada pode ser posta em forma mais conveniente para sua solução gráfica, usando-se $N_\beta N_\gamma/N_c$ como variável dependente e $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ como parâmetro variável, desse modo obtém-se uma função G do parâmetro de ineficiência.

A fórmula geral de coincidência será dada por:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 G \left[\frac{1 - \left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)}{\left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)} \right] \quad (2.11)$$

Onde a função $G \rightarrow 1$ e $N_\beta N_\gamma/N_c \rightarrow N_0$ quando $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma) \rightarrow 0$, sendo $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ denominado parâmetro de ineficiência.

Desse modo:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[1 + \frac{1 - \left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)}{\left(\frac{N_c}{N_\gamma} \right)} \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right) \right] \quad (2.12)$$

O valor extrapolado é obtido por ajuste polinomial dos dados experimentais. Para isso geralmente, são ajustadas retas onde o coeficiente angular corresponde à correção devido ao esquema de desintegração e o coeficiente linear à taxa de desintegração N_0 procurada.

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

Sendo $\left(\frac{\alpha_T \mathcal{E}_{ec} + \mathcal{E}_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \right)$ um parâmetro denominado constante de desintegração, a partir do qual se pode determinar o valor do coeficiente de conversão interna total (α_T).

Capítulo 3

RADIONUCLÍDEOS EM ESTUDO

Este capítulo reúne informações relevantes sobre o ^{111}In e ^{18}F , como: características, processos de decaimento, aplicabilidade na área médica e a padronização dos radionuclídeos no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$.

3.1. Características do ^{111}In

O ^{111}In é produzido em clíclotron pela reação $^{111}\text{Cd}(p,n)^{111}\text{In}$, o qual decai com uma meia-vida de 2,8 dias (BÉ., 2006) pelo processo de captura eletrônica populando os níveis excitados do ^{111}Cd , que se desexcita pela emissão de raios gama de 171 keV e 245 keV que competem com a emissão de elétrons de conversão interna.

Este radionuclídeo é utilizado em aplicações específicas de diagnóstico em medicina nuclear, como por exemplo, na marcação de biomoléculas diversas para localização de tumores (LION, 2002; THAKUR, 1977).

O esquema de decaimento do ^{111}In é apresentado na figura 3.1.

FIGURA 3.1 - Esquema de decaimento do ^{111}In (todas energias são em keV) (BÉ., 2006).

A tabela 3.1 detalha os valores das radiações emitidas durante o processo de decaimento do ^{111}In , suas energias e a intensidade em porcentagem.

TABELA 3.1 - Radiações do decaimento do ^{111}In , energias e intensidades (BÉ, 2006).

Radiação emitida	Energia (keV)	Intensidade (%)
Elétrons de conversão (ec)		
ec _{3,1} K (Cd)	144,57	8,13 ± 0,20
ec _{3,1} L (Cd)	167,3 – 167,7	1,02 ± 0,03
ec _{3,1} M (Cd)	170,51 – 170,88	0,197 ± 0,005
ec _{1,0} K (Cd)	218,64	4,93 ± 0,10
ec _{1,0} L (Cd)	241,33 – 241,81	0,770 ± 0,015
ec _{1,0} M (Cd)	244,58 – 244,95	0,150 ± 0,003
Raios γ		
$\gamma_{2,1}(\text{Cd})$	150,81	0,0015 ± 0,0015
$\gamma_{3,1}(\text{Cd})$	171,28	90,61 ± 0,20
$\gamma_{1,0}(\text{Cd})$	245,35	94,12 ± 0,06
Raios X		
X _{Kα2}	22,9843	23,65 ± 0,8
X _{Kα1}	23,1739	44,47 ± 0,26
X _{Kβ3}	26,0615	
X _{Kβ1}	26,0958	12,40 ± 0,14
X _{Kβ5}	26,304	
X _{Kβ2}	26,644	
X _{Kβ4}	26,7106	2,26 ± 0,07
X _{Lγ}	2,77	
X _{Lα}	3,127 – 3,134	
X _{Lη}	2,957	
X _{Lβ}	3,316 – 3,528	
X _{Lγ}	3,718 – 3,95	
Elétrons Auger (e_A)		
e _{AKLL} (Cd)	18,675 – 19,636	15,5 ± 0,4
e _{AKLX} (Cd)	21,923 – 23,172	
e _{AKXY} (Cd)	25,171 – 26,028	
e _{AL} (Cd)	3,404 – 3,804	100,5 ± 0,8

3.2. Padronização do ^{111}In no sistema de coincidência $4\pi(X,A)-\gamma$

Na equação que rege o método de coincidências para radionuclídeos que decaem pelo processo de captura eletrônica o símbolo β da equação geral do método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ é substituído pelo símbolo (X,A) na padronização do ^{111}In , que representa a detecção dos raios X e elétrons Auger provenientes do processo de captura eletrônica.

No caso do ^{111}In que decai pela emissão de raios X e elétrons Auger seguido pela emissão de dois gama em cascata com conversão interna, as fórmulas para a medição de coincidência a serem aplicadas são as sugeridas por Kawada e Hino (KAWADA e HINO, 1985), uma vez que devem ser consideradas além das coincidências entre os raios gama selecionados e o processo de captura de elétrons, as coincidências que ocorrem entre as duas transições gama ocasionada pelo total de eventos de conversão interna.

Deste modo temos que a fórmula de coincidência é dada por:

$$\frac{N_{4\pi} N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \left\{ 1 + \left(\frac{1 - \varepsilon_{4\pi}}{\varepsilon_{4\pi}} \right) \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + (\varepsilon_{4\pi})_{\gamma}}{1 + \alpha_T} \right) \right\}_i \quad (3.1)$$

Onde:

$$(\varepsilon_{4\pi})_i = \left(\frac{N_c}{N_{\gamma}} \right)_i = \varepsilon_{(X,A)} + (1 - \varepsilon_{(X,A)}) \sum_i \left[\prod_j \left(1 - \frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + (\varepsilon_{4\pi})_{\gamma}}{1 + \alpha_T} \right)_{j \neq i} \left(\frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + (\varepsilon_{4\pi})_{\gamma}}{1 + \alpha_T} \right)_i \right] \quad (3.2)$$

Os sufixos i e j indicam, como sugerido por Kawada e Yino, que cada notação corresponde à i-ésima e j-ésima transição, respectivamente.

- N_0 → Taxa de desintegração;
- $N_{4\pi}$ → Taxa de contagem do contador proporcional;
- N_γ → Taxa de contagem do canal gama de i-ésimo gama selecionado;
- N_c → Taxa de contagem coincidência;
- $\varepsilon_{(X,A)}$ → Eficiência do detector proporcional para eventos de captura de elétrons (elétrons Auger e de emissão de raios X);
- $(\varepsilon_{4\pi})_\gamma$ → Eficiência do detector proporcional para raios γ da i-ésima transição;
- a_{Ti} → Coeficiente de conversão interna total da i-ésima transição;
- ε_{eci} → Eficiência do detector proporcional para elétrons de conversão da i-ésima transição.

É importante ressaltar que o gama de 150,81 keV não foi considerado devido a sua baixa intensidade (tabela 3.1).

3.3. Características do ^{18}F

O ^{18}F , também produzido em ciclotron a partir da reação $^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$, é um importante radionuclídeo usado em sistema de imagem PET (*positron emission tomography*) empregado em medicina nuclear nos exames diagnósticos em oncologia.

Este radionuclídeo decai com uma meia-vida de 1,8 h por emissão de pósitrons (96,86%) e pela captura de elétrons (3,14%) para o estado fundamental do ^{18}O , emitindo fótons de aniquilação de 511 keV e raios X de baixa energia de 0,53 keV (BÉ., 2006). Na figura 3.2 é apresentado o seu esquema de decaimento.

FIGURA 3.2 - Esquema de decaimento do ^{18}F (BÉ, 2006).

A tabela 3.2 detalha os valores das radiações emitidas durante o processo de decaimento do ^{18}F , suas energias e a intensidade em porcentagem.

TABELA 3.2 - Radiações do decaimento do ^{18}F , energias e intensidades (BÉ, 2006).

Radiação emitida	Energia (keV)	Intensidade (%)
β^+	$633,5 \pm 0,6$	$96,86 \pm 0,16$
Captura eletrônica (ce)		
ce ₂	$1655,5 \pm 0,6$	$3,14 \pm 0,16$
Raios γ		
$\gamma^\pm$	$511,003 \pm 0,002$	$193,72 \pm 0,27$
Raios X		
X _{Kα2}	$0,456 - 0,502$	$2,91 \pm 0,15$

3.4. Padronização do ^{18}F no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$

Para a padronização do ^{18}F , que se desintegra por emissão de β^+ e captura eletrônica, o número de contagens beta é dado por (BACCARELLI et al, 2008):

$$N_\beta = aN_0\varepsilon_\beta + bN_0\varepsilon_{ce} + aN_0(1 - \varepsilon_\beta)(2\varepsilon_{\beta\gamma} - (\varepsilon_{\beta\gamma})^2) \quad (3.3)$$

Considerando-se que ε_{ce} é próximo de zero, então:

$$N_{\beta} = aN_0\varepsilon_{\beta} + aN_0(1 - \varepsilon_{\beta})(2\varepsilon_{\beta\gamma} - (\varepsilon_{\beta\gamma})^2) \quad (3.4)$$

O número de contagens gama é dado por:

$$N_{\gamma} = aN_0(2\varepsilon_{\gamma} - \varepsilon_{\gamma}^2) \quad (3.5)$$

O número de contagens de coincidências é dado por:

$$N_c = aN_0(2\varepsilon_{\gamma} - \varepsilon_{\gamma}^2)\{\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta})[2\varepsilon_{\beta\gamma} - (\varepsilon_{\beta\gamma})^2]\} \quad (3.6)$$

Deste modo, podemos concluir que:

$$\frac{N_{\beta}N_{\gamma}}{N_c} = \frac{aN_0\left\{1 + \frac{(1 - \varepsilon_{\beta})}{\varepsilon_{\beta}}[2\varepsilon_{\beta\gamma} - (\varepsilon_{\beta\gamma})^2]\right\}}{\left\{1 + \frac{\varepsilon_{\beta\gamma}(1 - \varepsilon_{\beta})}{\left(1 - \frac{\varepsilon_{\gamma}}{2}\right)\varepsilon_{\beta}}\right\}} \quad (3.7)$$

Onde:

- $a \rightarrow$ Probabilidade de emissão β^+ ;
- $b \rightarrow$ Probabilidade de emissão de captura eletrônica;
- $\varepsilon_{\beta} \rightarrow$ Eficiência beta;
- $\varepsilon_{\beta\gamma} \rightarrow$ Eficiência do detector beta para as radiações gama;
- $\varepsilon_{ce} \rightarrow$ Eficiência do detector beta para captura eletrônica;
- $\varepsilon_{\gamma} \rightarrow$ Eficiência gama.

Para determinação da atividade final, é aplicado ao valor extrapolado um fator de correção que considera a contribuição do ramo β^+ e a contribuição parcial do ramo de captura eletrônica.

Capítulo 4

METODOLOGIA

Este capítulo reúne aspectos importantes relacionados à metodologia empregada nesse trabalho, como:

- i. Preparação das Fontes
- ii. Arranjo experimental do sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$
- iii. Arranjo eletrônico do Sistema de Coincidência por *Software* (SCS)
- iv. Cálculo da atividade
- v. Correções Aplicadas
- vi. Determinação da curva de extrapolação
- vii. Método de Monte Carlo

Sendo necessária a abordagem detalhada da seqüência do método de trabalho para uma melhor compreensão do procedimento desenvolvido durante a obtenção e análise dos dados.

4.1. Preparação das Fontes

As fontes radioativas foram confeccionadas em anéis de aço inoxidável com 0,2 mm de espessura e 4 cm de diâmetro (arandelas), recobertos com filmes de Collodion (nitrato de celulose) com espessura de $10 \mu\text{g cm}^{-2}$, metalizados em ambos os lados com ouro para torná-los condutores.

As fontes radioativas e a metalizadora podem ser vistas nas figuras 4.1 e 4.2, respectivamente.

FIGURA 4.1 - Arandelas com filmes de Collodion metalizadas com ouro.

FIGURA 4.2 - Sistema para metalização de fontes.

A quantidade de material radioativo depositada em cada fonte foi determinada por meio da técnica do picnômetro (CAMPION, 1975). Primeiramente pesa-se o picnômetro contendo material radioativo. Logo em seguida, goteja-se uma quantidade do material em cima do filme de Collodion e pesa-se novamente o conteúdo do picnômetro.

Assim, da diferença das duas pesagens resulta a massa da alíquota depositada de material radioativo. Esse procedimento foi repetido para todas as fontes utilizadas neste trabalho. Sobre o material radioativo foi depositada uma gota de uma solução diluída de Cyastat (500 $\mu\text{g/mL}$) para quebrar a tensão superficial do líquido.

A balança utilizada neste trabalho foi a Microanalítica digital modelo Sartorius MC 21S com sensibilidade de 20 μg .

O picnômetro e a balança podem ser vistos nas figuras 4.3 e 4.4, respectivamente.

FIGURA 4.3 - Picnômetro utilizado para a determinação das massas das fontes.

FIGURA 4.4 - Balança Microanalítica digital modelo Sartorius MC 21S.

A secagem das fontes foi feita por meio de jato de nitrogênio aquecido (45 °C), para evitar a formação de cristais grandes durante a secagem (WYLLIE et al., 1970).

Foram utilizadas 14 fontes a partir de duas soluções de ^{111}In com massas que variaram entre 10 mg e 90 mg. Já no caso do ^{18}F foram utilizadas quatro fontes com massas entre 10 mg e 40 mg para a determinação da atividade da solução radioativa.

Para a obtenção das curvas de extrapolação, foram feitas séries de medidas acrescentando filmes de Collodion de espessuras variando de 20 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ à 200 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ (figura 4.5), sob e sobre as fontes de ^{111}In , para variação da eficiência de detecção por meio da absorção das partículas de menor energia. Essa técnica foi utilizada para o ^{111}In devido ao valor da meia-vida ser de 2,8 dias e permitir o acréscimo dos filmes durante 2 semanas.

FIGURA 4.5 - Filmes de Collodion (absorvedores externos) para a variação da eficiência.

A curva de extrapolação para o ^{18}F foi obtida pela técnica de discriminação eletrônica, que consiste em analisar o espectro beta de uma única medida selecionando vários intervalos, de modo a se obter diferentes valores de eficiência beta. Para o ^{18}F foi utilizada essa técnica devido sua meia-vida ser de 1,8 h. Assim o acréscimo de filmes de Collodion seria inviável sendo que há longo prazo a fonte não teria mais como ser medida.

4.2. Arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$

O Sistema de Coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$, utilizado no presente trabalho, consiste num sistema tríplice de detectores com um detector proporcional a gás fluente com geometria 4π acoplado a um detector semiconductor HPGe (para alta resolução em energia) e a um cintilador de NaI(Tl) (para maior eficiência).

O arranjo experimental utilizado para as medidas do ^{111}In foi o sistema $4\pi\beta\text{--}\gamma$, constituído pelo o detector proporcional a gás fluente com geometria 4π (detector 2 da figura 4.6) que foi utilizado para detecção dos elétrons Auger e raio X, e o semiconductor HPGe (detector 3 da figura 4.6) para a detecção dos raios γ .

No caso do ^{18}F , foi utilizado o detector proporcional a gás fluente com geometria 4π (detector 2 da figura 4.6), para a detecção dos pósitrons, e o semiconductor HPGe (detector 3 da figura 4.6) para detecção dos gamas de aniquilação.

As contagens provenientes dos detectores foram registradas pelo sistema SCS e as coincidências foram obtidas a posteriori por meio do programa SCTAC6.

A figura 4.6 representa o arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ do LMN.

- **Detector 1:** Cintilador de NaI(Tl)
- **Detector 2:** Detector proporcional a gás fluente com geometria 4π
- **Detector 3:** Semicondutor de HPGe

FIGURA 4.6 - Arranjo experimental do Sistema de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$ do LMN, onde a região 1 representa o cintilador de NaI(Tl), a região 2 o detector proporcional a gás fluente com geometria 4π e a região 3 o detector semicondutor HPGe.

4.2.1. Detector Proporcional 4π (PC)

O detector proporcional utilizado para as medidas no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ possui um formato com geometria 4π e é preenchido internamente com gás de alta pureza constituído de 90% de argônio e 10% de metano, operado à pressão de 0,1 MPa. É composto por duas partes simétricas de latão, com formato interno semi-cilíndrico. Cada uma das partes possui um anodo, formado por um fio de aço inoxidável, com diâmetro de 50 μm , preso por isoladores de teflon.

A vista em corte transversal do detector proporcional do LMN está representada na figura 4.7.

FIGURA 4.7 - Vista em corte transversal do detector proporcional do LMN (LACERDA, 2013).

Entre as duas metades é encaixada uma placa deslizante para o posicionamento da fonte no interior do detector sem a necessidade de abri-lo. A vedação é feita com anéis de borracha.

A figura 4.8 representa a placa deslizante do detector proporcional 4π utilizado no presente trabalho.

FIGURA 4.8 - Placa deslizante do detector proporcional 4π do LMN com o suporte para a fonte.

Este tipo de detector é utilizado para a detecção da radiação β (negativa e positiva), elétrons de conversão, raios X e elétrons Auger. O contador apresenta uma eficiência de detecção de partículas beta próxima de 100%, e eficiência para detecção de radiação gama menor que 0,5%, podendo detectar partículas α em presença de radiação β , devido a partícula α ser muito mais ionizante. Os elétrons livres formados são acelerados pelo campo elétrico no interior do detector, ganhando energia no percurso e ionizando outras moléculas de gás.

4.2.2. Detector HPGe

Como foi dito no capítulo 1, os detectores semicondutores, apesar de não possuírem uma eficiência melhor que a dos cristais cintiladores, possuem um melhor poder de resolução. Por isso escolheu-se este tipo de detector para as medidas do ^{111}In , devido à capacidade de separar as energias dos fótons incidentes como os picos gama de 171 keV e 245 keV para a determinação dos Coeficientes de Conversão Interna Total. Este tipo de detector também foi utilizado para as medidas do ^{18}F .

Pode-se observar na figura 4.9, um gráfico que demonstra a diferença da resolução dos picos de radiação gama medidos com detector semicondutor (resolução boa) e cristal cintilador (resolução ruim), onde entende-se resolução pela capacidade do detector de distinguir dois sinais muito próximos.

FIGURA 4.9 - Gráfico de comparação dos picos de resolução para os detectores semicondutores e cintiladores (KNOLL, 2010).

Para considerar uma resolução boa ou ruim, utiliza-se uma definição formal que é:

$$R = \text{FWHM}/E_0 \quad (4.1)$$

Onde:

R → Resolução;

FWHM → Largura à meia altura;

E_0 → Energia.

A resolução é normalmente expressa com um percentual. Detectores semicondutores possuem uma resolução típica de 1%, enquanto que detectores de cintilação possuem uma resolução de 5-10 %.

O detector semicondutor de HPGe utilizado no LMN é da marca ORTEC – Modelo GMX 20195, coaxial com diâmetro 49 mm, comprimento de 56,8 mm e tensão de operação de 3.000 volts (negativos) com resolução de 1,76 keV para o pico de 1332 keV do ^{60}Co .

A figura 4.10 mostra o detector semicondutor HPGe do LMN utilizado no presente trabalho.

FIGURA 4.10 - Detector semicondutor HPGe do LMN utilizado no presente trabalho.

4.3. Arranjo eletrônico do Sistema de Coincidência por *Software* (SCS)

A aquisição de dados foi realizada por meio do sistema SCS que digitaliza os pulsos a partir do amplificador ligado a cada um dos detectores no sistema de coincidência: contador proporcional e o HPGe, registrando as amplitudes e os instantes de ocorrência dos

pulsos de detecção β e γ , em arquivos de disco. Deste modo, os sinais provenientes dos dois amplificadores (detector β e detector γ) são enviados a um painel de conexão equipado com quatro entradas conectado por meio de um cabo especial à placa PCI 6123 da National Instruments instalada num microcomputador. O gerenciamento é feito por meio de um software desenvolvido em LabVIEW versão 8.5 (TOLEDO, 2008).

Na figura 4.11 são apresentados o painel de conexão e a tela do programa de aquisição em LabVIEW.

FIGURA 4.11 - Painel de conexão e tela do programa de aquisição em LabVIEW.

Este sistema empregado na padronização de radionuclídeos tem muitas vantagens com relação à metodologia convencional. No sistema convencional, diversos módulos eletrônicos são necessários, exigindo ajustes precisos de *hardware*, para cada tipo de medida, enquanto que com o sistema SCS todo ajuste pode ser efetuado na fase de análise, utilizando-se o programa de coincidência, especialmente desenvolvido para o sistema.

Depois de serem coletados os dados digitalizados são processados pelo código SCTAC6. Este código permite a seleção de janelas de raios gama, o tempo morto e o tempo de resolução no processamento off-line para o cálculo da atividade de fonte. Esse código será descrito no tópico 4.4.

A figura 4.12 representa o diagrama de bloco do Sistema de Coincidência por Software (SCS).

FIGURA 4.12 - Diagrama de bloco do Sistema de Coincidência por Software (SCS) (TOLEDO et al., 2008).

Conforme mostra a figura 4.12, os dados analógicos das vias gama e betas provenientes dos detectores de radiação do sistema seguem de forma independente, o caminho mais básico, sendo apenas pré-amplificados e amplificados.

Uma única medida é necessária para a seleção das energias gama de interesse, pois os níveis de discriminação da via beta e da via gama são fixados posteriormente nas condições de análise.

Na medida do ^{111}In , a subtração da radiação de fundo foi feita de modo similar ao usado em espectrometria gama, o que permite além da subtração da radiação de fundo ambiente, a subtração das contagens interferentes Compton no entorno do foto pico de interesse.

4.4. Cálculo da atividade

Depois da aquisição de dados no sistema SCS, o cálculo de atividade é feito por meio do software de análise SCTAC6. Este programa reconstitui os espectros beta, gama e o espectro de coincidência mostrados nas figuras 4.13, 4.14 e 4.15.

FIGURA 4.13 - Espectro do Canal Beta obtido pelo sistema SCS para o ^{111}In .

FIGURA 4.14 - Espectro Gama obtido pelo sistema SCS, indicando as janelas gamas selecionadas do ^{111}In .

FIGURA 4.15 - Espectro Coincidência obtido pelo sistema SCS, indicando as contagens totais dos eventos detectados beta, gama e das coincidências entre os eventos beta e os eventos gama na janela gama selecionada.

O espectro de coincidências fornece as contagens totais dos eventos detectados beta, gama e das coincidências entre os eventos beta e os eventos gama na janela gama selecionada. Com este espectro tem-se também a distribuição de tempo entre as contagens beta e as contagens gama, representada pelo pico de coincidências.

Neste programa estão incorporadas as correções aplicadas para determinação da atividade, que estão detalhadas no tópico 4.5. Como foi dito anteriormente, por meio deste código a seleção de janelas de raios gama, os tempos morto e de resolução são definidos a posteriori.

Na figura 4.16 é apresentado o arquivo de entrada identificado como .SCC.

Neste arquivo são colocados os dados referentes à medida em análise como:

```
In-111 Fonte 15136 171 SI LLD: 1811 1912 250 1200 1 8192
0.093583 0.10
02 04 13 09 22
27 03 13 00 00
1 1 1 0 1 0
2.8049 0.014 60.00 0.01
1.0 0.1
99 105
1.0 0.1
916 930
1.0 0.1
349 876
1.0 0.1
382 395
1.0 0.1
37 43
1024 3000 300 5.0 1.3
1811 1912 250 1200 1 8192 0.5
3 3 1
C:\USER\SI\In-111\2013\111b10204.LVM
C:\USER\SI\In-111\2013\111g10204.LVM
C:\USER\SI\In-111\2013\bgb10204.LVM
C:\USER\SI\In-111\2013\bgg10204.LVM
```

- **Vermelho:** Identificação do radionuclídeo e da fonte;
- **Marrom:** Os intervalos selecionados dos espectros gama e beta;
- **Azul:** A massa e o erro;
- **Rosa:** Data e horário de medida e o de referência;
- **Verde:** O tempo de meia-vida;
- **Preto:** Os intervalos correspondentes no espectro de coincidências das contagens beta, gama, coincidências e espúrias;
- **Amarelo:** O tempo morto com respectivas incertezas porcentual;
- **Roxo:** Localização dos espectros.

FIGURA 4.16 - Arquivo .scc típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe.

Para executar o programa SCTAC6.exe, é montado um arquivo .bat em que são colocadas as informações referentes a localização do arquivo de entrada e os nomes dos arquivos de saída correspondentes à medida, na figura 4.17 é apresentado um arquivo .bat típico onde podem ser identificadas estas informações.

```
MD C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\

CD\
CD C:\LMN\Fortran\Data
COPY SCTAC6-In-111-15136-171-ge.SCC SCTAC6.SCC

171 keV

CD\
CD C:\LMN\Fortran\SCTAC6\Debug
SCTAC6.EXE

CD\
CD C:\LMN\Fortran\data
COPY SCTAC.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\SCTAC6-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY ATIV.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\ATIV-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NBETA.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NBETA-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NGAMA.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NGAMA-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NGAMAJ.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NGAMAJ-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NCOIN.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NCOIN-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NCOINB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NCOINB-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NTAC.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NTAC-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NTACB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NTACB-In-111-15136-171-ge.OUT
COPY NGAMAB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-171\NGAMAB-In-111-15136-171-ge.OUT

MD C:\LMN\FORTRAN\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\

CD\
CD C:\LMN\FORTRAN\DATA
COPY SCTAC6-In-111-15136-245-ge.SCC SCTAC6.SCC

245 keV

CD\
CD C:\LMN\FORTRAN\SCTAC6\DEBUG
SCTAC6.EXE

CD\
CD C:\LMN\FORTRAN\DATA
COPY SCTAC.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\SCTAC6-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY ATIV.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\ATIV-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NBETA.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NBETA-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NGAMA.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NGAMA-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NGAMAJ.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NGAMAJ-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NCOIN.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NCOIN-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NCOINB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NCOINB-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NTAC.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NTAC-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NTACB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NTACB-In-111-15136-245-ge.OUT
COPY NGAMAB.OUT C:\LMN\Fortran\OUT\In-111-45\FONTE15136-245\NGAMAB-In-111-15136-245-ge.OUT
```

EXIT

FIGURA 4.17 - Arquivo .bat típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe para as janelas gama de 171 keV e 245 keV do ^{111}In .

O arquivo de saída dos resultados contém as informações dos dados de entrada, os valores das incertezas porcentual, o resultado da atividade, os parâmetros de eficiência e

ineficiência com respectivas incertezas. Na figura 4.18 é apresentado um arquivo de saída.out típico.

```

RESULTADO DE ATIVIDADE - SCTAC6/CONTAC20
*****

In-111 Fonte 15136 171 SI LLD: 1811 1912 250 1200 1 8192

MEIA-VIDA(D)  ERRO(%)  C T MORTO(S)  ERRO(%)  C T MORTO(S)  BG  ERRO(%)
2.80490E+00    .01    1.00000E+00    .00    1.00000E+00  BG    .00

IAR  IBG  IBGFTE  IARQ  IWIN  ITAUR  NC
1    1    1    1    1    1    1024.

NG1  NG2  NB1A  NB1B  NB  NB1  NB2  DELTA
1811 1912 250 1200 1 250 8192 .5

T FTE(S)  T BG(S)  TTAC(US)  TAU(US)  TAUR(US)
3000    300    5.00    3.00    1.30

DATA MED  HORA MED  DATA REF  HORA REF
2/ 4/2013  9:22    27/ 3/2013  0: 0

DELT (D)  COR.DEC.DT  ERRO(%)  COR.DEC.MED  ERRO(%)  MASSA (G)  ERRO(%)
6.390  4.8509E+00  .02    1.0043E+00  .00    .093583  .10

CONTAGEM      K1      K2      AREA BG  ERRO(%)      AREA      SAREA(%)
BETA          99      105    11320.00    2.97      3577874.00    .05
GAMA1         916     930     6222.80    1.27      66034.43     .43
COINC1        349     876    1936.40    2.27      24134.00     .64
COINC ESP 1    382     395      .00      .00         4.83    10.31
PULSADOR      37      43      .00      .00         .00     .00

*****

EFICIENCIA BETA1          3.7329E-01
ERRO NA EFICIENCIA BETA1 (%) 6.2694E-01

INEFICIENCIA BETA1        1.6789E+00
ERRO NA INEFICIENCIA BETA1 (%) 1.0004E+00

EFICIENCIA GAMA1          6.7513E-03

*****

ATIVIDADE1 (Bq/g)          1.6639E+05
DESVIO PADRAO NA ATIVIDADE1 (%) .64

*****

ARQUIVOS DA FONTE:
C:\USER\SI\In-111\2013\111b10204.LVM
C:\USER\SI\In-111\2013\111g10204.LVM
ARQUIVOS DO BG:
C:\USER\SI\In-111\2013\bgb10204.LVM
C:\USER\SI\In-111\2013\bgg10204.LVM
*****

```

FIGURA 4.18 - Arquivo .out típico para execução do programa de análise SCTAC6.exe.

Esse procedimento do cálculo da atividade utilizando o software de análise SCTAC6 é repetido para todas as fontes utilizadas nesse trabalho. Os dados obtidos, como

eficiência e atividade, são fundamentais para a construção dos gráficos das curvas de extrapolação.

O programa fornece os valores das incertezas obtidas por meio do método estatístico de propagação de erros que serão utilizadas na determinação dos parâmetros da curva de extrapolação.

4.5. Correções Aplicadas

Para determinação da atividade são aplicadas correções para tempo morto, radiação de fundo, decaimento radioativo e para as coincidências acidentais ou espúrias.

4.5.1. Correção para tempo morto

Em um sistema de detecção, o tempo morto total do sistema corresponde ao tempo morto intrínseco do detector juntamente com o tempo morto do sistema eletrônico associado que geralmente é muito pequeno. O tempo morto se define como um intervalo mínimo de tempo que separa dois eventos para que sejam registrados como pulsos distintos.

4.5.2. Correção para radiação de fundo

As radiações de fundo provem de eventos externos independentes que chegam ao detector. Deste modo, é feita uma contagem sem a fonte logo após cada medida mantendo todos os ajustes e condições do sistema.

As taxas de contagens reais são obtidas subtraindo-se as taxas de contagem devidas à radiação de fundo.

4.5.3. Correção para decaimento radioativo

Para um radionuclídeo que decai com um tempo de meia-vida ($T_{1/2}$) muito maior que o tempo de medida (t), terá a equação para esta correção:

$$N_r = N_m e^{\lambda(t_m - t_r)} \quad (4.1)$$

Onde:

N_r → Taxa de desintegração na data de referência;

N_m → Taxa de desintegração na data da medida;

t_r → Data de referência;

t_m → Data da medida;

λ → Constante de decaimento.

A correção para o decaimento radioativo durante o tempo de medida ($T_{1/2} > t$) é feita devido o processo de decaimento da fonte que poderá alterar os resultados, sendo mais sensível para radionuclídeos com meias-vidas curtas.

A equação 4.2 representa a fórmula para esta correção é:

$$N_r = N_m \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}} \quad (4.2)$$

Desse modo:

N_r → Taxa de desintegração na data de referência;

N_m → Taxa de desintegração na data da medida;

t → Tempo de medida;

λ → Constante de decaimento.

4.5.4. Correção para coincidências acidentais ou espúrias

Como foi descrito no Método de Coincidência, a taxa de coincidências é obtida pela detecção de duas radiações distintas consideradas simultâneas em relação ao tempo de resolução do sistema de detecção. No entanto, podem ser considerados coincidentes eventos de núcleos distintos, pois o tempo de resolução assume um valor finito. Estes eventos são denominados coincidências espúrias ou coincidências acidentais. As

coincidências acidentais podem interferir no número de contagens, acarretando em um erro no valor absoluto da atividade.

De acordo com formalismo de Cox e Isham (COX e ISHAM, 1977) adaptado por Smith (SMITH, 1978; SMITH, 1987) estes eventos podem ser corrigidos em função do tempo de resolução e do tempo morto quando este for considerado igual para as vias beta e gama. Este cálculo está incorporado no programa SCTAC6.

4.6. Determinação da curva de extrapolação

Para a determinação da curva de extrapolação foi utilizado o método de ajuste de mínimos quadrados por meio do programa LINFIT que incorpora a metodologia da matriz covariância. As propagações de incertezas consideram intervalo de confiança de 68,3% ($u=1$).

Para execução deste programa utiliza-se um arquivo de entrada .dat com dados experimentais x e y e as incertezas em y com os respectivos fatores de correlação, sendo 0 (zero) para não correlacionado e 1 (um) para correlacionado. No arquivo de entrada é indicada a ordem do polinômio de ajuste (grau n).

O arquivo de saída .out, onde além dos dados de entrada fornecidos, estão apresentados os resultados do ajuste, sendo eles:

- i. Parâmetros ajustados para o polinômio de grau n e respectivas incertezas;
- ii. Valores interpolados com a função obtida;
- iii. Qui-quadrado reduzido;
- iv. Matriz de correlação.

4.7. Simulação pelo método de Monte Carlo

O método de Monte Carlo consiste em 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. Este método foi criado em 1940, pelos pesquisadores S. Ulam e J. Von Neumann (SÓBOL, 1976).

Neste trabalho foi utilizado o programa ESQUEMA (TAKEDA, 2006), o qual simula todos os processos de interação da radiação por meio da técnica de Monte Carlo, considerando o esquema de decaimento do radionuclídeo, todos os materiais e geometrias da configuração experimental, bem como as características das fontes radioativas. O código ESQUEMA prevê o comportamento da curva de extrapolação. O código utilizado para o transporte da radiação na simulação foi o MCNP5 (*Monte Carlo N Particle Transport Code System*) (ORNL, 2006). Os detalhes da estrutura estão descritos por Takeda (TAKEDA, 2006). Para execução do programa Esquema são necessários os seguintes arquivos de entrada e saída:

Arquivos de entrada

esquema.dat - Neste arquivo são fornecidas as características do radionuclídeo em estudo: Número atômico do elemento, número 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.

constant.dat - Neste arquivo são fornecidas as características da medida que deseja simular: Números de canais do multicanal, números de histórias (eventos), espessura mínima e máxima dos absorvedores, números de absorvedores, resolução em energia do detector gama, raio da arandela da fonte e níveis de discriminação da via beta.

npicos.dat - Neste arquivo são fornecidos: intervalos de energia γ que vão formar os eventos coincidentes com as partículas β .

Arquivos de saída

MCBG.out - Neste arquivo são fornecidas as informações da simulação como: dados de entrada lidos pelo programa; matriz do espectro β ; matriz com as contagens no canal beta, gama e coincidência; total de números aleatórios gerados e tempo de processamento.

NBGC.out - Neste arquivo são fornecidas: 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 ou variação do nível de discriminação correspondente.

Na figura 4.19 é mostrada a geometria do sistema de coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ tríplice do LMN que foi utilizado neste trabalho para as medidas do ^{18}F considerada nas simulações obtidas por meio do código VISED, incluído no pacote MCNP5.

Pode-se detalhar as cores de acordo com a figura 4.19, sendo:

- **Azul:** Ar
- **Amarelo:** detector cintilador – NaI(Tl) – Via γ
- **Laranja:** Tubo Fotomultiplicador do NaI(Tl)
- **Roxo:** Detector de germânio hiperpuro – HPGe – Via γ
- **Rosa:** Contador proporcional a gás fluente – $4\pi(\text{PC})$ – Via β
- **Verde:** Gás P-10 dentro do volume do detector proporcional
- **Cinza:** Blindagem de chumbo
- **Esfera:** Esfera de escape da simulação de Monte Carlo (MCNP5)

FIGURA 4.19 – Geometria do arranjo experimental para o Sistema de Coincidência $4\pi\beta\text{--}\gamma$ tríplice do LMN considerada com o código VISED-MCNP5 (BRANCACCIO, 2013).

Capítulo 5

RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1. Medida do ^{111}In no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$

Para a padronização do ^{111}In no sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ foram utilizadas 14 fontes obtidas a partir de duas soluções fornecidas pelo Centro de Radiofarmácia.

A eficiência do detector proporcional foi variada de 37,31% a 13,50% para o gama de 171 keV e para o gama de 245 keV de 35,68% a 11,82% por meio de acréscimo de filmes de COLLODION de espessuras variadas em cima e embaixo da fonte com a intenção de absorver as partículas de menor energia para a obtenção da curva de extrapolação.

Os dados registrados no sistema foram analisados pelo programa SCTAC6 e foi determinada a atividade.

Nas tabelas 5.1 e 5.2 são apresentados os valores das eficiências (N_c/N_γ), das ineficiências $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$, das atividades experimentais ($N_{4\pi}N_\gamma/N_c$) e suas incertezas para cada janela gama (171 keV e 245 keV) medidos.

TABELA 5.1 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade ($N_{4\pi}N_\gamma/N_c$) para a janela gama de 171 keV obtida para o ^{111}In .

Janela gama	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_{4\pi}N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)
171 keV	37,31	1,68	738,0 ± 7,4
	33,56	1,98	771,2 ± 9,3
	33,33	2,00	768,3 ± 5,8
	32,68	2,06	767,8 ± 2,9
	32,36	2,09	758,9 ± 5,5
	30,30	2,30	773,8 ± 3,6
	29,67	2,37	779,5 ± 2,4
	28,99	2,45	780,9 ± 5,1
	27,70	2,61	785,8 ± 9,2
	26,67	2,75	805,9 ± 4,5
	24,63	3,06	817,3 ± 6,6
	23,42	3,27	822,5 ± 12,1
	23,26	3,30	839,5 ± 9,1
	22,22	3,50	841,9 ± 7,5
	20,75	3,82	882,2 ± 12,7
	21,51	3,65	863,3 ± 11,8
	21,32	3,69	887,3 ± 18,5
	21,19	3,72	866,5 ± 7,3
	19,92	4,02	878,1 ± 7,8
	19,42	4,15	904,0 ± 13,4
	18,66	4,36	898,7 ± 13,8
	17,51	4,71	931,1 ± 9,0
	17,12	4,84	935,0 ± 10,7
	16,69	4,99	987,8 ± 35,7
	15,85	5,31	960,3 ± 17,4
	13,81	6,24	1028,1 ± 18,5
	13,50	6,41	1060,1 ± 24,7

TABELA 5.2 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade ($N_{4\pi}N_\gamma/N_c$) para a janela gama de 245 keV obtida para o ^{111}In .

Janela gama	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_{4\pi}N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)
245 keV	35,68	1,80	717,3±6,0
	35,19	1,84	712,1 ± 2,1
	34,48	1,90	711,2 ± 3,8
	32,78	2,05	715,2 ± 3,2
	31,92	2,13	724,2 ± 2,0
	31,63	2,16	717,3 ± 5,0
	29,03	2,45	748,7 ± 10,5
	27,05	2,70	745,0 ± 5,8
	25,70	2,89	757,1 ± 8,2
	25,38	2,94	761,6 ± 6,3
	24,50	3,08	763,9 ± 9,0
	23,66	3,23	776,2 ± 7,6
	23,26	3,30	765,4 ± 9,9
	22,13	3,52	790,3 ± 9,6
	20,20	3,95	809,3 ± 10,8
	16,50	5,06	823,8 ± 12,0
	15,49	5,46	841,3 ± 13,8
	15,11	5,62	860,6 ± 18,7
	11,82	7,46	932,3 ± 17,7

As curvas obtidas para a extrapolação dos dois fótons gama selecionados (171 keV e 245 keV), são apresentadas na figura 5.1.

FIGURA 5.1 - Curva de extrapolação da atividade experimental ($N_{4\pi}N_{\gamma}/N_c$) em função da ineficiência $(1 - N_c/N_{\gamma}) / (N_c/N_{\gamma})$ para as duas janelas gama do ^{111}In .

Os pontos em losango correspondem aos valores experimentais com respectivas incertezas para a janela gama de 171 keV e a linha contínua representa o ajuste da reta para o mesmo gama.

No caso dos pontos em círculo, eles correspondem aos valores experimentais com respectivas incertezas para a janela gama de 245 keV e a linha tracejada representa o ajuste da reta para o mesmo gama.

Os parâmetros de ajuste para cada curva foram obtidos pelo ajuste de mínimos quadrados por meio do código LINFIT que incorpora a metodologia da matriz covariância.

A tabela 5.3 apresenta os parâmetros de extrapolação e os valores obtidos para a inclinação das duas janelas gama selecionadas, em conjunto com a matriz de correlação correspondente.

Os parâmetros do ajuste da reta são:

A (Coeficiente linear): N_0

B (Coeficiente angular): $N_0 \left(\frac{\alpha_T \mathcal{E}_{ec} + (\mathcal{E}_{4\pi})_\gamma}{1 + \alpha_T} \right)$

TABELA 5.3 - Parâmetros de ajuste obtidos para as duas janelas γ selecionadas, por meio de ajuste dos mínimos quadrados, com a matriz de correlação correspondente.

Janela	Parâmetros do ajuste		Matriz de Correlação	
171 keV	A	$(6,391 \pm 0,054) \times 10^5$	1	
	B	$(6,07 \pm 0,21) \times 10^4$	- 0,963	1
245 keV	A	$(6,380 \pm 0,037) \times 10^5$	1	
	B	$(4,00 \pm 0,16) \times 10^4$	- 0,957	1

A atividade específica (parâmetro A da Tabela 5.3), obtido com as duas janelas gama concordam dentro das incertezas experimentais.

As principais incertezas envolvidas nas medições foram: estatísticas de contagem, tempo morto, meia-vida e ajuste da curva de extrapolação. Todas estas incertezas foram incluídas na estimativa de incerteza. Na tabela 5.4 são apresentadas as incertezas típicas obtidas.

TABELA 5.4 - Incertezas típicas parciais na atividade, em percentagem ($k = 1$).

Componentes	Incerteza (%)	Comentários
Estatística de contagem	*	Estatística em $N_{4\pi}$ e N_c/N_γ incluídos no ajuste da extrapolação
Massa	0,10	Certificado de calibração da balança
Tempo morto	0,10	software
Radiação de fundo	0,20	Estatística de contagem
Decaimento	0,01	Meia-vida
Tempo de Resolução	0,10	Estatística em correções de coincidência acidental
Curva da extrapolação da eficiência	0,80	Ajuste de mínimos quadrados
Incerteza total	0,85	

5.2. Determinação dos Coeficientes de Conversão Interna Total do ^{111}In

A inclinação de cada curva de extrapolação determinada pela razão B/A fornece o parâmetro C igual a:

$$\frac{B}{A} = C = \frac{\alpha_T \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha_T} \quad (5.1)$$

Os valores do coeficiente de conversão interna total (α_T) para cada uma das transições estudadas (171 keV e 245 keV) são apresentados na tabela 5.5 juntamente com os valores do parâmetro C , os valores das eficiências de detecção do detector beta para a radiação gama calculados ($\varepsilon_{\beta\gamma}$) calculados por meio do programa MCNP5 e os valores das eficiências dos elétrons de conversão (ε_{ec}).

TABELA 5.5 – Tabela com os valores do parâmetro C, os valores das eficiências de detecção do detector beta para a radiação gama calculados ($\epsilon_{\beta\gamma}$) e os valores das eficiências dos elétrons de conversão (ϵ_{ec}) para o cálculo dos Coeficientes de Conversão Interna Total (α_T) para 171 keV e 245 keV do ^{111}In .

Parâmetros	171 keV	245 keV
C	$0,0951 \pm 0,0034$	$0,0627 \pm 0,0026$
$\epsilon_{\beta\gamma}$	$0,0014 \pm 0,0004$	$0,0012 \pm 0,0003$
ϵ_{ec}	1	1
α_T	$0,1038 \pm 0,0034$	$0,0657 \pm 0,0026$

O componente principal para a incerteza total dos Coeficientes de Conversão Interna Total determinados neste trabalho é causado pelo grande intervalo de extrapolação, devido à baixa eficiência do contador proporcional para os elétrons Auger e os raios X provenientes do processo de captura eletrônica.

Na tabela 5.6 os valores dos coeficientes de conversão interna determinados neste trabalho são comparados com os dados da literatura.

TABELA 5.6 - Os resultados dos coeficientes de conversão interna total das transições 171 keV e 245 keV, em comparação com a literatura.

Energia (keV)	171	245
Este trabalho	$0,1038 \pm 0,0034$	$0,0657 \pm 0,0026$
(STEFFEN, 1956)	$0,099 \pm 0,003$	$0,0621 \pm 0,0015$
(SPARRMAN, 1966 <i>apud</i> BÉ et al., 2006)	$0,100 \pm 0,003$	$0,0618 \pm 0,0015$
(SHEVELEV et al., 1975 <i>apud</i> BÉ et al., 2006)	$0,124 \pm 0,007$	$0,0634 \pm 0,0030$
(KAWADA; HINO, 1985)	$0,1018 \pm 0,0013$	$0,0620 \pm 0,0009$
(RAMAN et al., 2006) (Teórico)	$0,1068 \pm 0,0015$	$0,0637 \pm 0,0009$
(CHECHEV, 2006)	$0,1036 \pm 0,0024$	$0,0625 \pm 0,0007$

Como pode ser visto o resultado obtido neste trabalho para a transição de 171 keV está de acordo com os valores da literatura, com exceção do valor de Shevelev (SHEVELEV et al., 1975 *apud* BÉ et al., 2006). O resultado do coeficiente de conversão interna total da transição de 245 keV está de acordo com os valores da literatura dentro das incertezas experimentais.

5.3. Medida do ^{18}F no Sistema de Coincidência $4\pi(\text{PC})\text{-HPGe}$ e simulação pelo método de Monte Carlo

Para a padronização do ^{18}F no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ foi utilizada uma solução fornecida pelo Centro de Radiofarmácia, a partir dessa solução foram produzidas quatro fontes. A eficiência beta foi alterada pela discriminação eletrônica e variou de 96,86% – 79,81%.

Nas tabelas 5.7, 5.8, 5.9 e 5.10 são apresentados os valores da eficiência (N_c/N_γ), da ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$, das atividades experimentais ($N_\beta N_\gamma/N_c$), suas incertezas (contagem, eficiência, massa e decaimento) e respectivas correlações, considerando zero (0) para não correlacionado e um (1) para correlacionado. A eficiência de cada fonte foi variada por meio da discriminação eletrônica pelo programa SCTAC6.

Em decorrência da solução utilizada não apresentar boa homogeneidade, os resultados foram normalizados por meio do valor médio da radiação gama medida no detector de HPGe, normalização esta aplicada no cálculo final da atividade. A incerteza nesse fator foi incorporada na incerteza final.

TABELA 5.7 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 1 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.

Fonte	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
1	96,44	0,04	$17,73 \pm 0,16$	0,1	0,58	0,1	0,08
	96,28	0,04	$17,73 \pm 0,16$	0,1	0,58	0,1	0,08
	96,05	0,04	$17,72 \pm 0,16$	0,1	0,58	0,1	0,08
	95,83	0,04	$17,70 \pm 0,16$	0,1	0,59	0,1	0,08
	95,45	0,05	$17,69 \pm 0,16$	0,1	0,60	0,1	0,08
	94,96	0,05	$17,68 \pm 0,16$	0,1	0,61	0,1	0,08
	94,46	0,06	$17,66 \pm 0,16$	0,1	0,62	0,1	0,08
	93,84	0,07	$17,65 \pm 0,16$	0,1	0,64	0,1	0,08
	93,28	0,07	$17,61 \pm 0,17$	0,1	0,65	0,1	0,08
	92,53	0,08	$17,59 \pm 0,17$	0,1	0,67	0,1	0,08
	91,72	0,09	$17,57 \pm 0,17$	0,1	0,69	0,1	0,08
	90,90	0,10	$17,53 \pm 0,17$	0,1	0,70	0,1	0,08
Correlação				0	0	1	1

TABELA 5.8 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 2 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.

Fonte	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
2	93,12	0,07	$17,73 \pm 0,14$	0,05	0,38	0,1	0,01
	92,29	0,08	$17,73 \pm 0,14$	0,05	0,40	0,1	0,01
	91,32	0,10	$17,73 \pm 0,14$	0,05	0,42	0,1	0,01
	90,39	0,11	$17,71 \pm 0,14$	0,05	0,43	0,1	0,01
	89,43	0,12	$17,69 \pm 0,14$	0,05	0,45	0,1	0,01
	88,26	0,13	$17,72 \pm 0,14$	0,05	0,47	0,1	0,01
	87,44	0,14	$17,67 \pm 0,15$	0,05	0,49	0,1	0,01
	86,48	0,16	$17,64 \pm 0,15$	0,05	0,50	0,1	0,01
	85,43	0,17	$17,63 \pm 0,15$	0,05	0,52	0,1	0,01
	84,34	0,19	$17,63 \pm 0,15$	0,05	0,54	0,1	0,01
	83,25	0,20	$17,64 \pm 0,15$	0,05	0,55	0,1	0,01
	82,12	0,22	$17,65 \pm 0,16$	0,05	0,57	0,1	0,01
	80,97	0,24	$17,65 \pm 0,16$	0,05	0,59	0,1	0,01
	79,81	0,25	$17,66 \pm 0,16$	0,05	0,60	0,1	0,01
Correlação				0	0	1	1

TABELA 5.9 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 3 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.

Fonte	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
3	95,50	0,05	$17,71 \pm 0,13$	0,07	0,31	0,1	0,06
	95,30	0,05	$17,72 \pm 0,13$	0,07	0,32	0,1	0,06
	95,14	0,05	$17,72 \pm 0,13$	0,07	0,32	0,1	0,06
	94,82	0,05	$17,72 \pm 0,13$	0,07	0,33	0,1	0,06
	94,46	0,06	$17,71 \pm 0,13$	0,07	0,34	0,1	0,06
	93,95	0,06	$17,70 \pm 0,13$	0,07	0,35	0,1	0,06
	93,29	0,07	$17,70 \pm 0,14$	0,07	0,36	0,1	0,06
	92,68	0,08	$17,68 \pm 0,14$	0,07	0,37	0,1	0,06
	91,80	0,09	$17,68 \pm 0,14$	0,07	0,39	0,1	0,06
	90,86	0,10	$17,69 \pm 0,14$	0,07	0,41	0,1	0,06
	89,91	0,11	$17,68 \pm 0,14$	0,07	0,42	0,1	0,06
	88,83	0,13	$17,68 \pm 0,14$	0,07	0,44	0,1	0,06
	87,65	0,14	$17,69 \pm 0,14$	0,07	0,46	0,1	0,06
	86,39	0,16	$17,70 \pm 0,15$	0,07	0,48	0,1	0,06
Correlação				0	0	1	1

TABELA 5.10 – Valores da eficiência (N_c/N_γ), ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$ e atividade experimental ($N_\beta N_\gamma/N_c$) para a fonte 4 de ^{18}F juntamente com as incertezas consideradas (%) e respectivas correlações.

Fonte	N_c/N_γ (%)	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$ (kBq.g ⁻¹)	$\sigma_{\text{contagens}}$	$\sigma_{\text{eficiência}}$	σ_{massa}	$\sigma_{\text{decaimento}}$
4	96,86	0,03	17,65 ± 0,12	0,05	0,16	0,1	0,13
	96,71	0,03	17,64 ± 0,12	0,05	0,16	0,1	0,13
	96,38	0,04	17,64 ± 0,12	0,05	0,17	0,1	0,13
	96,01	0,04	17,62 ± 0,12	0,05	0,17	0,1	0,13
	95,51	0,05	17,61 ± 0,12	0,05	0,18	0,1	0,13
	94,84	0,05	17,61 ± 0,12	0,05	0,19	0,1	0,13
	94,13	0,06	17,60 ± 0,13	0,05	0,20	0,1	0,13
	93,32	0,07	17,58 ± 0,13	0,05	0,22	0,1	0,13
	92,43	0,08	17,56 ± 0,13	0,05	0,23	0,1	0,13
	91,42	0,09	17,54 ± 0,13	0,05	0,24	0,1	0,13
	90,51	0,10	17,51 ± 0,13	0,05	0,26	0,1	0,13
	89,28	0,12	17,51 ± 0,13	0,05	0,27	0,1	0,13
	87,94	0,14	17,52 ± 0,13	0,05	0,29	0,1	0,13
	86,82	0,15	17,48 ± 0,13	0,05	0,30	0,1	0,13
Correlação				0	0	1	1

Componentes de incertezas típicas da atividade em por cento são apresentados na tabela 5.11.

TABELA 5.11 - Incertezas típicas parciais na atividade, em percentagem ($k = 1$).

Componentes	Incerteza (%)	Comentários
Estatística de contagem	*	Estatística
Massa	0,10	Certificado de calibração da balança
Tempo morto	0,10	Software
Radiação de fundo	0,30	Estatística de contagem
Decaimento	0,01	Meia-vida
Tempo de Resolução	0,10	Estatística em correções de coincidência acidental
Normalização	0,66	Normalização pelo HPGe
Ajuste	0,17	Extrapolação da curva de eficiência (constante)
Incerteza total	0,76	

O parâmetro de ineficiência foi variado por meio da mudança do nível inferior de discriminação e obteve-se uma reta com inclinação nula, dentro da incerteza experimental. A simulação de Monte Carlo confirmou o comportamento da curva de extrapolção. O número de histórias utilizado na simulação foi de 10^7 .

Na tabela 5.12 são apresentados os valores do nível de discriminação, ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$, atividade $(N_\beta N_\gamma/N_c)$ e sua incerteza para a simulação de Monte Carlo.

TABELA 5.12 – Valores do nível de discriminação, ineficiência $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$, atividade $(N_\beta N_\gamma/N_c)$ e sua incerteza para a simulação de Monte Carlo.

Nível de discriminação	$(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)$	$N_\beta N_\gamma/N_c$	Incerteza (%)
0,0001	0,0025	1,0000	0,00
0,0005	0,0048	1,0001	0,01
0,0007	0,0063	1,0000	0,01
0,0009	0,0081	1,0000	0,01
0,0011	0,0105	1,0000	0,01
0,0013	0,0132	0,9999	0,01
0,0015	0,0167	1,0001	0,01
0,0017	0,0204	1,0000	0,01
0,0019	0,0250	1,0001	0,01
0,0021	0,0304	1,0000	0,01
0,0023	0,0367	1,0001	0,02
0,0025	0,0440	0,9999	0,02
0,0027	0,0525	1,0000	0,02
0,0029	0,0624	1,0000	0,02
0,0031	0,0738	1,0000	0,02
0,0032	0,0869	1,0003	0,02
0,0034	0,1010	1,0003	0,02
0,0036	0,1161	1,0000	0,03
0,0038	0,1334	1,0002	0,03
0,0040	0,1521	1,0003	0,03
0,0042	0,1711	0,9999	0,03
0,0044	0,1920	0,9997	0,03

De acordo com os valores da atividade (tabela 5.12) obtidos pela técnica de Monte Carlo, a curva de extrapolação mostrou com um comportamento sem inclinação. Assim, a determinação da atividade do ^{18}F foi feita por meio do ajuste de uma constante.

Um ajuste linear, utilizando o código LINFIT, que leva em conta todas as correlações foi utilizado para determinação da atividade das fontes. Os valores obtidos para as quatro fontes e a atividade média com respectivas incertezas estão apresentadas na tabela 5.13.

TABELA 5.13 – Valores das atividades de cada fonte de ^{18}F e atividade média com respectivas incertezas.

Fontes	Atividade ($\text{kBq}\cdot\text{g}^{-1}$)
1	$17,66 \pm 0,12$
2	$17,67 \pm 0,12$
3	$17,70 \pm 0,12$
4	$17,60 \pm 0,12$
Média	$17,66 \pm 0,04$

A figura 5.2 mostra a curva de extrapolação do ^{18}F considerando-se as medidas das quatro fontes e a curva obtida pela simulação de Monte Carlo normalizada pela atividade média.

FIGURA 5.2 - Curva de extrapolação atividade experimental ($N_{\beta}N_{\gamma}/N_c$) em função da ineficiência $(1 - N_c/N_{\gamma})/(N_c/N_{\gamma})$ para a janela gama de 511 keV do ^{18}F comparado com a simulação de Monte Carlo.

Os pontos pretos representam a simulação de Monte Carlo, os pontos coloridos correspondem aos valores experimentais das quatro fontes de ^{18}F , sendo os pontos roxos para a fonte 1, os pontos verdes para a fonte 2, os pontos azuis para a fonte 3 e os pontos vermelhos para a fonte 4.

Para obter a atividade final uma correção devido à contribuição do processo de captura de elétrons foi aplicada. Esta correção foi $f_{ce} = (1,0202 \pm 0,0072)$ (BACCARELLI et al., 2008), e o valor da atividade final resultou em $(18,02 \pm 0,06) \text{ kBq.g}^{-1}$.

Capítulo 6

CONCLUSÃO

No presente trabalho foi desenvolvida a metodologia de padronização dos radionuclídeos ^{111}In e ^{18}F pelo Sistema de Coincidência por Software (SCS) e a determinação dos coeficientes de conversão interna total do ^{111}In . O sistema para a padronização utilizado foi o $4\pi\beta\text{--}\gamma$ que se mostrou adequado de acordo com os resultados obtidos.

A eficiência do detector proporcional 4π variou entre 37,31% a 13,50% para o gama de 171 keV e para o gama de 245 keV entre 35,68% a 11,82%. A baixa eficiência se deu pelo alto valor do coeficiente de fluorescência dos raios X em concorrência com os elétrons Auger.

A utilização do sistema SCS possibilitou, devido à análise off-line dos espectros, a subtração da contribuição de eventos Compton da radiação gama de 245 keV em baixo do pico da radiação gama de 171 keV.

A solução de ^{111}In foi padronizada com sucesso com boa precisão pelo sistema de coincidência proposto. Os coeficientes de conversão interna total de 171 keV e 245 keV foram determinados por um método absoluto.

O resultado do coeficiente de conversão interna total de 171 keV foi comparado com os dados da literatura apresentando boa concordância dentro da incerteza experimental, com exceção do valor de Shevelev.

O resultado do coeficiente de conversão interna total de 245 keV foi comparado com os dados da literatura apresentando boa concordância dentro da incerteza experimental.

No caso do ^{18}F , a utilização do sistema digital de coincidência SCS foi bem sucedida e foi possível realizar todas as medições em um único dia, permitindo a obtenção da curva de extrapolação utilizando a técnica de discriminação eletrônica para cada fonte com uma só medida.

A eficiência beta foi alterada pela discriminação eletrônica e variou entre 96,86% a 79,81%.

Por meio da simulação de Monte Carlo, foi possível estabelecer o comportamento da curva de extrapolação confirmando um comportamento sem inclinação, permitindo assim determinar a atividade do ^{18}F por meio do ajuste de uma constante.

O valor da atividade específica final do ^{18}F foi $(18,02 \pm 0,06) \text{ kBq.g}^{-1}$.

Para trabalhos futuros, sugere-se a aplicação do método de Monte Carlo para o ^{111}In e a padronização do ^{111}In e do ^{18}F com o cintilador NaI(Tl) pelo sistema SCS.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

BACCARELLI, A. M., DIAS, M. S., KOSKINAS, M. F., BRANCACCIO, F. Standardization of F-18 by means of a $4\pi(\text{PS})\beta\text{-}\gamma$ Plastic Scintillator Coincidence System. **IEEE Transactions On Nuclear Science.**, v. 55, p. 1767-1773. jun. 2008.

BAERG, A. P.. Absolute measurement of radioactivity. **Metrologia.**, v. 3, p. 105-108. ago. 1967.

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

BÉ, M. M. **Table of radionucléides:** Monographie BIPM-5. França: Bureau National de Métrologie, 2006.

BÉ, M. M. **Table of radionucléides, Comments on evaluations:** Monographie BIPM-5. França: Bureau National de Métrologie, v. 4, mar. 2006.

BOBIN, C.. Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. **Metrologia**, UK, v. 44, p.27-31, 2007.

BRANCACCIO, F. **Metodologia de aquisição de dados e análise por software, para sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e sua aplicação na padronização de radionuclédeos, com ênfase em transições metaestáveis.** 2013. 126 f. Tese (Doutorado) - Curso de Tecnologia Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2013.

BRITO, A.B., KOSKINAS, M.F., LITVAK, F., TOLEDO, F., DIAS, M.S. Standardization of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ by means of a software coincidence system. **Applied Radiation And Isotopes.**, v. 70, p. 2097-2102. set. 2012.

CAMPION, P. J.. **Procedures for accurately diluting and dispensing radioactive solutions:** Monographie BIPM – 1. França: Bureau International Des Poids Et Mesures, 1975.

CAMPION, P. J.. The standardization of radioisotopes by the beta-gama coincidence method using high efficiency detectors. **Int. J. Appl. Radiot. Isot.**, v. 4, p. 232-248. jan. 1959.

CHECHEV, V. P.. **LNHB - Laboratoire National Henri Becquerel Recommended Data:** Table de Radionucléides – ^{111}In – Coments. 2006. Disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>. Acesso em: 10 out. 2013.

COX, D. R.; ISHAM, V.. A Bivariate Point Process Connected with Electronic Counters. **Proceedings Of The Royal Society Of London: Series A, Mathematical and Physical Sciences.**, v. 356, p. 149-160. jun. 1977.

DIAS, M. S.. **LINFIT:** a code for linear least square fit with covariance analysis. São Paulo: IPEN-CNEN/SP, 1999.

DIAS, M. S.. **SCTAC:** a code for activity calculation based on Software Coincidence Counting measurements. 6. ed. São Paulo: IPEN-CNEN/SP, 2010.

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

EISBERG, R.; RESNICK, R.. **Física Quântica:** Átomos, Moléculas, Sólidos, Núcleos e Partículas. Rio de Janeiro: Elsevier, 1979.

EVANS, R. D.. **The Atomic Nucleus.** New York: Mc Grawhill, 1955.

GERALDO, L. P.; SMITH, D. L.. **Least square methods and covariance matrix applied to the relative efficiency calibration of a Ge(Li) detector.** São Paulo: IPEN-CNEN/SP, 1989. 18 p.

KAWADA, Y.; HINO, Y.. Decay data measurements of ^{111}In by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence spectrometry with a combination of a $4\pi\beta$ counter and a Ge detector. **Nucl. Instrum. Methods A.**, v. 241, p. 199-206. nov. 1985.

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

KOKTA, L. Determination of peak area. **Nucl. Instrum. Methods.** v. 112, p. 245-251. 1973.

KOSKINAS, M. F., LACERDA, F. W., YAMAZAKI, I. M., TOLEDO, F., TAKEDA, M. N., DIAS, M. S. Standardization of ^{68}Ga by means of a $4\pi\beta\text{--}\gamma$ Software Coincidence System. In: NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM, MEDICAL IMAGING CONFERENCE, **IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC)**. Anaheim: Ieee Conference Record, v. 59, p. 269 – 272, 2012.

LACERDA, F. W.. **Padronização de ^{68}Ga em Sistemas de Coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$** . 2013. 89 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Tecnologia Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2013.

LILLEY, J.. **Nuclear Physics Principles and Applications**. Inglaterra: John Wiley & Sons, 2004.

LION, L. F.. **Desenvolvimento de novo método de produção de ^{111}In a partir da irradiação de Cd com prótons**. 2002. 75 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Tecnologia Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2002.

MOURA, L. P.. **Método de coincidência generalizado para a medida absoluta da atividade de radionuclídeos – Aplicação na determinação do coeficiente de conversão interna de transição de 279 keV de ^{203}Tl** . 1969. 84 f. Tese (Doutorado) - Curso de Física, Universidade de Campinas, Campinas, 1969.

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

ORNL. **Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP5**. RSICC – Computer Code Collection, Oak Ridge National Laboratory, 2006.

PRICE, W. J. **Nuclear radiation detection**. 2. ed., New York: McGraw Hill, 1964.

RAMAN, S., ERTUGRUL, M., NESTOR, C. W., Jr., TRZHASKOVSKAYA, M. B. Ratios of internal conversion coefficients. **At. Data Nucl. Tables.** v. 92, p. 207-243. mar. 2006.

SHEVELEV, G. A.; TROYTSKAYA, A. T.; KARTASHOV, V. M.. The excited states of ^{111}Cd . **Izv. Akad. Nauk Sssr: Ser. Fiz.**, v.39, p. 2038-2044. jan. 1975.

SMITH, D. L.. Generation of the covariance matrix for a set of nuclear data produced by collapsing a larger parent set through the weighted averaging of equivalent data points. **Nuclear Instruments and Methods A.**, v. 257, p. 361-364. jun. 1987.

SMITH, D. L.. Improved correction formulae for coincidence counting. **Nuclear Instruments And Methods.**, v. 152, p. 505-519. jan. 1978.

SÓBOL, I. M. **Método de Monte Carlo**. Moscou, Mir, 1976.

SPARRMAN, P., MARRELIUS, A., SUNDSTROM, T., PETTERSON, H.. **Z. Phys. B**, v. 192, p. 439, fev.1966.

STEFFEN, R. H.. Influence of the Time-Dependent Quadrupole Interaction on the Directional Correlation of the Cd-111 Gamma Rays. **Phys. Rev.**, v. 103, p. 116-125. fev. 1956.

TAKEDA, M. N.. **Aplicação do método de Monte Carlo no estudo da padronização de radionuclídeos com esquema de desintegração complexo em sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$** . 2006. 115 f. Tese (Doutorado) - Curso de Tecnologia Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2006.

TAUHATA, L., IWAHARA, A., de OLIVEIRA, A.E., REZENDE, E.A., DELGADO, J., da SILVA, C.J.. Proficiency test in the determination of activity of radionuclides in radiopharmaceutical products measured by nuclear medicine services in 8 years of comparisons programmes in Brazil. **Applied Radiation And Isotopes.**, v. 66, p. 981-987. jun. 2008.

THAKUR, M. L.. Gallium-67 and Indium-111 Radiopharmaceuticals. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, p. 183-201. fev. 1977.

TOLEDO, F.; BRANCACCIO, F.; LAPOLLI, A.; DIAS, M. S.. Design of electronic system with simultaneous registering of pulse amplitude and event time applied to

$4\pi\beta\text{--}\gamma$ coincidence method. **Ieee Transactions On Nuclear Science**. Dresden, p. 1003-1005. out. 2008.

TOLEDO, F.. **Desenvolvimento de um sistema eletrônico com registro simultâneo de amplitude e instante de ocorrência dos pulsos aplicado ao método de coincidências $4\pi\beta\text{--}\gamma$** . 2008. 81 f. Dissertação (Mestrado) - Curso de Tecnologia Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2008.

WYLLIE, H. A.; JOHNSON, E. P.; LOWENTHAL, G. C.. A procedure for stirring aliquots of radioactive solutions when making thin 4π counting sources. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, v. 21, p. 497-499. ago. 1970.

YOSHIMURA, E. M.. Física das Radiações: Interação da radiação com a matéria. **Revista Brasileira de Física Médica**, v. 3, p.57-67, fev. 2009.