



PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DO $^{106}\text{Ru/Rh}$ E DO ^{57}Co PELO MÉTODO DE
CONTAGEM EM ANTICOINCIDÊNCIA $4\pi\text{NaI(TL)-CL}$

Eduarda Alexandre Rezende

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Luiz Tauhata

Rio de Janeiro

Abril de 2016

PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DO $^{106}\text{Ru/Rh}$ E DO ^{57}Co PELO MÉTODO DE
CONTAGEM EM ANTICOINCIDÊNCIA $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$

Eduarda Alexandre Rezende

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS
REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM
CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:

Prof. Ricardo Tadeu Lopes, D.Sc.

Prof. Luiz Tauhata, D.Sc.

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

Dr. Carlos José da Silva, D.Sc.

Dr. Akira Iwahara, D.Sc.

Dra. Estela Maria de Oliveira, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

ABRIL DE 2016

Rezende, Eduarda Alexandre

Padronização absoluta do $^{106}\text{Ru/Rh}$ e do ^{57}Co pelo método de contagem em anticoincidência $4\pi\text{NaI(Tl)-CL/}$ Eduarda Alexandre Rezende. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2016.

XIII, 71 p.: il.; 29,7 cm.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Luiz Tauhata

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2016.

Referências Bibliográficas: p. 63-71.

1. Método de anticoincidência. 2. Padronização absoluta. 3. I. Lopes, Ricardo Tadeu *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

Ao meu marido, Júlio César Penna Furtado.
Ao meu irmão, Pedro Augusto Alexandre Rezende.
Aos meus pais, Eliane Alexandre e Eduardo Rezende.
Às minhas tias, Cátia Regina Alexandre e Ana Lúcia Alexandre.
Aos meus avós, Augusto Alexandre e Delta Andrade (in memoriam).

AGRADECIMENTOS

Eu sou uma mulher muito abençoada. Agradeço a Deus pela minha vida, saúde e por tudo que Ele fez e faz por mim.

Agradeço ao meu marido Júlio César e a minha família, por todo amor, incentivo, apoio, carinho e por toda paciência nas minhas variações de humor.

Agradeço ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) pela oportunidade da realização deste trabalho.

Agradeço ao professor Ricardo Tadeu Lopes pela orientação, confiança e apoio.

Agradeço ao professor e grande amigo Luiz Tauhata por toda sua ajuda e confiança. Pelo incentivo, pelas palavras de conforto e encorajamento. Por todo ensinamento recebido.

Agradeço ao Carlos José pela inestimável colaboração no trabalho. Por toda atenção e ajuda.

Agradeço ao Poledna e ao Ronaldo por todo incentivo, apoio, ajuda e horas dedicadas..

Agradeço ao Jhonny e ao Eduardo pela ajuda com as preparações das amostras.

Agradeço ao Akira pela grande ajuda recebida na confecção deste trabalho. E também por todo ensinamento e apoio.

Agradeço aos colegas do laboratório de radionuclídeos pelo apoio, incentivo e ajuda. Pelo ambiente agradável. São eles: José Ubiratan, Carlos José, Denise, Eduardo, Jhonny, Ronaldo, Adilson, Akira, Poledna, Paulo, Jamir, Antônio Eduardo, Cândida, Nadjara e Maura.

Agradeço a Estela Maria de Oliveira pelo incentivo, carinho, amizade e cuidado, dispensados a mim.

Agradeço aos funcionários da secretaria do Programa de Engenharia Nuclear da COPPE pelo apoio na área acadêmica e suporte administrativo.

Agradeço pelas amigas que essa caminhada me presenteou: Amanda, Bárbara, Tainá e Miriam.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.)

PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DO $^{106}\text{Ru/Rh}$ E DO ^{57}Co PELO MÉTODO DE
CONTAGEM EM ANTICOINCIDÊNCIA $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$

Eduarda Alexandre Rezende

Abril /2016

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Luiz Tauhata

Programa: Engenharia Nuclear

O sistema de padronização absoluta da grandeza atividade pela técnica de anticoincidência e cronometragem em tempo vivo foi implementado no LNMRI em 2008 para diminuir os impactos de alguns fatores que influenciavam na medição da atividade pela técnica de contagem em coincidência, usada há décadas no laboratório, como por exemplo, a correção do tempo morto e a resolução.

Com o sistema de anticoincidência, a variedade de radionuclídeos que pode ser calibrada pelo LNMRI, em relação ao tipo de decaimento, aumentou. O objetivo deste trabalho é a padronização do ^{57}Co e do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelo método de contagem em anticoincidência, bem como estimar as suas incertezas de medição.

O ^{57}Co foi escolhido por ter um papel fundamental na medicina nuclear, servindo de padrão para os calibradores de dose e o ^{106}Ru é utilizado no tratamento de câncer de olhos. Os resultados das padronizações foram altamente satisfatórias, o ^{106}Ru com incerteza expandida igual a 1% e o ^{57}Co com 1,3%. Ambas com $k=2$ para um nível de confiança de aproximadamente 95,45%. Sendo suficiente para assegurar uma incerteza menor que 5%, atendendo recomendações internacionais e nacionais para os serviços de medicina nuclear.

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

STANDARDIZATION OF $^{106}\text{Ru/Rh}$ AND ^{57}Co BY LIVE-TIMED
ANTICOINCIDENCE COUNTING $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$

Eduarda Alexandre Rezende

April/2016

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Luiz Tauhata

Department: Nuclear Engineering

The system for absolute activity standardization by anticoincidence live-timed counting techniques was implemented at LNMRI in 2008 to reduce the impacts of some correction factors in determination of the activity with coincidence counting technique used for decades in the lab, for example, the correction of dead time and resolution.

With live-timed anticoincidence system, the variety of radionuclides that can be calibrated by LNMRI was increased, in relation to the type of decay. The objective of this work is the standardization of ^{57}Co and $^{106}\text{Ru/Rh}$ activities by the live-timed anticoincidence system and estimate yours measurement uncertainties.

The ^{57}Co was chosen to be important in nuclear medicine, serving as a standard for dose calibrators and the ^{106}Ru is used in the treatment of eye cancers. The results were highly satisfactory. The ^{106}Ru with the expanded uncertainty equal to 1% and ^{57}Co with 1.3%. Both to $k = 2$ for a confidence level of 95.45%. This results are sufficient to ensure a lower uncertainty than 5%, given national and international recommendations for nuclear medicine.

ÍNDICE

RESUMO	vi
ABSTRACT	vii
1. INTRODUÇÃO	01
1.1 Objetivos	04
1.2 Justificativa	05
1.3 Organização do Trabalho	07
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	09
2.1 Método de Contagem em Antico incidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	09
2.2 Padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$	10
2.3 Padronização do ^{57}Co	10
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	12
3.1 Método Contagem em Antico incidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	12
3.1.1 Tempo Morto Não Extendível	14
3.1.2 Tempo Morto Extendível	17
3.1.3 Método de Extrapolação da Eficiência	19
3.1.4 Detector Cintilador Iodeto de Sódio [NaI(Tl)]	20
3.1.5 Cintilação	22
3.2 Método Curva de Eficiência	24
3.3 Método Comparação Padrão-amostra	25
3.4 Método Pico-soma	26
3.5 Determinação da Probabilidade de Emissão Gama	28
3.6 Radionuclídeos Padronizados	29
3.6.1 Rutênio-106/Ródio-106	29
3.6.2 Cobalto-57	29
3.6.3 Hólmio-166m	31
3.7 Estimativa das Incertezas de Medição	31
4. MATERIAIS E MÉTODOS	33
4.1 Melhorias Aplicadas ao Sistema	33
	viii

4.2 Métodos Utilizados para a Padronização	33
4.2.1 Arranjo Experimental Método Contagem em Anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	34
4.2.2 Arranjo Experimental para medição do $^{106}\text{Ru/Rh}$	36
4.2.3 Arranjo Experimental para medição do ^{57}Co	38
4.3 Características das Soluções	39
4.3.1 Solução do $^{106}\text{Ru/Rh}$	39
4.3.2 Solução do ^{57}Co	40
4.4 Procedimento Experimental	43
4.4.1 Medição pelo Método de Contagem em Anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	43
4.4.2 Medição pelo Método Curva de Eficiência, Comparação Padrão-amostra, Pico-soma e da Determinação das Probabilidades de Emissão Gama	43
4.4.3 Geometria das amostras	45
4.4.3.1 Ampola 2 cm	46
4.4.3.2 Frascos de Cintilação Líquida	46
4.4.3.3 Sólida em PVC	46
4.4.4 Componentes das Incertezas de Medição	47
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES	48
5.1 Padronização do $^{106}\text{Ru/Ru}$	48
5.2 Probabilidade de Emissão Gama do $^{106}\text{Ru/Rh}$	51
5.3 Padronização do ^{57}Co	52
5.4 Probabilidade de Emissão Gama do ^{57}Co	59
5.5 Medição do $^{166\text{m}}\text{Ho}$	60
6. CONCLUSÃO	61
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	63

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 3.1 – Esquema de Decaimento do $^{106}\text{Ru/Rh}$	30
Figura 3.2 – Esquema de Decaimento do ^{57}Co	30
Figura 3.3 - Esquema de Decaimento do $^{166\text{m}}\text{Ho}$	31
Figura 4.1 –Diagrama de Blocos do Método de Contagem em Antico incidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	35
Figura 4.2 –Diagrama de Blocos do sistema d3 rotina.	36
Figura 4.3 - Suportes de PVC: $P_2=10$ cm e $P_4=20$ cm.	37
Figura 4.4 - Solução mãe de ^{106}Ru do LNMRI, ampola 38.	40
Figura 4.5 - Geometria das amostras.	45
Figura 4.6 – Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes.	47
Figura 5.1 - Curva de extrapolação usada pelo método de coincidência para o $^{106}\text{Ru/Rh}$	49
Figura 5.2 - Curva de eficiência do sistema d3 rotina na posição P_4 .	51
Figura 5.3 - Curva de extrapolação usada pelo método de coincidência para o ^{57}Co	54
Figura 5.4 - Curva de eficiência do sistema d4 na posição P_2 .	58
Figura 5.5 - Curva de extrapolação do método de coincidência para o $^{166\text{m}}\text{Ho}$	60

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 4.1 – Fontes de ^{106}Ru	40
Tabela 4.2 – Fontes de ^{57}Co	42
Tabela 5.1 – Valores das atividades por unidade de massa do $^{106}\text{Ru/Rh}$ obtidos pelo método de contagem em anticoincidência .	48
Tabela 5.2 – Componentes de incerteza na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelo método de anticoincidência .	49
Tabela 5.3 – Valores da atividade por unidade de massa do $^{106}\text{Ru/Rh}$ obtidos pelos métodos de contagem em anticoincidência e curva de eficiência.	50
Tabela 5.4 - Componentes de incerteza na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelo método curva de eficiência	50
Tabela 5.5 – Probabilidades de emissão gama do $^{106}\text{Ru/Rh}$	52
Tabela 5.6 – Valores da atividade por unidade de massa do ^{57}Co obtidos pelo método de contagem em anticoincidência.	53
Tabela 5.7 – Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método de anticoincidência.	53
Tabela 5.8 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 11 a 14S15.	55
Tabela 5.9 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelo método pico-soma para as fontes de 89 a 92S15.	55
Tabela 5.10 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 01 a 05S14.	56

Tabela 5.11 - Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método curva de eficiência.	56
Tabela 5.12 - Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método padrão-amostra	57
Tabela 5.13 - Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método pico-soma	57
Tabela 5.14 – Valores da atividade por unidade de massa do ^{57}Co obtidos pelos métodos de contagem em anticoincidência, curva de eficiência, padrão-amostra e pico-soma.	59
Tabela 5.15 – Probabilidades de emissão gama do ^{57}Co	59
Tabela 5.16 – Medição do $^{166\text{m}}\text{Ho}$	60

ÍNDICE DE QUADROS

Quadro 4.1 – Componentes de incerteza

47

Capítulo 1

INTRODUÇÃO

Na metrologia de radionuclídeos as calibrações podem ser realizadas por meio de métodos absolutos e relativos. Os métodos relativos são aqueles que necessitam de um padrão para ser comparado a fonte radioativa a ser calibrada. Os métodos absolutos são caracterizados pela determinação da atividade de uma amostra por meio das taxas de contagem observadas, necessitando apenas, em alguns casos, do conhecimento prévio do esquema de decaimento do radionuclídeo. (TAUHATA, 2003)

A escolha do método para padronização de um radionuclídeo depende principalmente do tipo de decaimento e da probabilidade de emissão. Existem radionuclídeos com maior dificuldade de medição em um método do que em outro, devido às características do radionuclídeo. Por outro lado, um radionuclídeo pode ser calibrado por mais de um método. Isto é importante porque permite a análise crítica do processo de calibração adotado e a garantia da qualidade do resultado. Os métodos mais usados pelos laboratórios nacionais são os métodos de contagem em coincidência, anticoincidência, cintilação líquida (CIEMAT/NIST), TDCR e espectrometria α , X e γ . (TAUHATA, 2003)

Radionuclídeos que decaem por captura eletrônica são usualmente calibrados pelo método de cintilação em meio líquido. Para radionuclídeos com emissão de raios X e γ , a espectrometria de fótons é a mais recomendada. Quando um radionuclídeo emite duas ou mais radiações, são indicados os métodos de contagem em coincidência e anticoincidência. (TAUHATA, 2003; IWAHARA, 1979; DA SILVA, 2008; LOUREIRO, 2000)

No Brasil, o Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) pertence ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), órgão da

Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), foi designado em 1989 pelo Instituto Nacional de Metrologia Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO), para atuar como laboratório designado na área de metrologia das radiações ionizantes. (IRD, 2014; INMETRO, 2014)

Em 2004 foram implementados, no LNMRI, os requisitos da norma NBR ISO/IEC 17025 para laboratório de calibração e o mesmo se submeteu à avaliação de pares para validar a implementação dos requisitos da norma. O sistema da qualidade foi em seguida avaliado em reunião do QSTF (Quality System Task Force) do Sistema Interamericano de Metrologia (SIM) sendo considerado satisfatório. (LNMRI, 2014; ABNT, 2005)

As funções do LNMRI são: implantar e manter métodos e padrões relacionados à metrologia das radiações ionizantes; participar de comparações-chaves organizadas pelo BIPM; participar das comparações promovidas pelas organizações regionais de metrologia e promover e organizar a coerência das medições realizadas no Brasil no campo das radiações ionizantes. (LNMRI, 2014, DA SILVA, 2008; REZENDE, 2011)

O LNMRI garante a confiabilidade dos seus sistemas por meio de suas participações nos programas de comparação organizados pelo BIPM desde 1987, para garantir a rastreabilidade de suas medições. Além disso, também submete, periodicamente, soluções radioativas padronizadas ao Sistema Internacional de Referência (SIR) e participa como convidado, de comparações organizadas e promovidas pelas organizações regionais de metrologia como: o SIM ao qual pertence, a Região Metrológica da Europa (EURAMET) e a Região Metrológica da Ásia e Pacífico (APMP). (TAUHATA, 2006; TAUHATA, 2008)

Os métodos de padronização relativos utilizados no LNMRI são a espectrometria X e γ com detector de Ge, cintilação Líquida (CIEMAT/NIST), câmara de ionização e o

proporcional 2π . Para padronização absoluta são o contagem em coincidência, contagem em anticoincidência e pico-soma.

O sistema utilizado no método de contagem em coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ é composto por um detector proporcional para a contagem beta e um detector de NaI(Tl) para a contagem gama. (IWAHARA, 1979; IWAHARA, 2009) Para padronização em anticoincidência é usado um cintilador líquido como detector para contagem beta e um detector de NaI(Tl) para a contagem gama. (DA SILVA, 2008)

No processo de medição, para se obter os diversos pontos da curva a ser extrapolada para a determinação da atividade por unidade de massa, deve-se variar a eficiência de detecção beta. Com o uso do detector proporcional a gás no sistema de contagem em coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$, faz-se necessário medir diferentes amostras com quantidades de carreadores inativos diferentes para a variação da eficiência beta. (IWAHARA, 1979)

Como o fluxo do gás é constante durante a medição é preciso, para cada troca de amostra, parar o sistema, fechar a saída do gás, esperar cerca de quinze minutos, abrir todo o sistema, trocar a fonte, fechar o sistema, abrir a saída do gás, esperar cerca de trinta minutos para estabilizar a pressão do fluxo do gás para então iniciar as contagens.

Esse processo consome muito tempo e pode influenciar no resultado, já que os radionuclídeos estão em constante processo de decaimento. Quando se trabalha com radionuclídeos de meia-vida curta, principalmente usados na medicina nuclear, o fator tempo se torna ainda mais crucial para a medição.

Por estes motivos, Da Silva e colaboradores implementaram em 2008, um sistema de padronização absoluta por anticoincidência $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$ com cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível. Nesse sistema substituiu o detector proporcional pelo cintilador líquido. (DA SILVA, 2008)

A vantagem do uso de um detector à cintilação líquida sobre o detector proporcional, é que com o uso do cintilador líquido a variação da eficiência beta é feita com um discriminador monocanal. Outra vantagem é que o detector a cintilação líquida pode detectar elétrons de conversão, além da radiação beta negativa ou positiva. Isto amplia bastante o número de radionuclídeos que podem ser calibrados com este sistema. (DA SILVA, 2008)

Com o aumento da eficiência de detecção beta e a realização das sucessivas medições do canal beta, sem o desligamento do sistema, aumenta bastante a estabilidade do mesmo, aumentando sua precisão metrológica e reduzindo o tempo de medição. O sistema só é desligado para a troca de amostras.

Neste trabalho foram realizadas melhorias no sistema de anticoincidência do LNMRI como o uso de uma nova blindagem da luz ambiente e a substituição das fotomultiplicadoras. Esse sistema que utiliza o detector de NaI(Tl) e um cintilador líquido, é capaz de medir diferentes tipos de radiações, como por exemplo, radiações X, γ , β^+ , β^- e captura eletrônica.

Os radionuclídeos ^{106}Ru e ^{57}Co foram padronizados pelo método de contagem em anticoincidência. Destes radionuclídeos, o $^{106}\text{Ru/Rh}$ possui esquema de decaimento complexo e ainda não havia sido padronizado pelo método de anticoincidência no LNMRI.

1.1 Objetivos

O primeiro objetivo deste trabalho foi desenvolver melhorias para o sistema de padronização absoluta do LNMRI a fim de diminuir o impacto de algumas desvantagens do sistema como, por exemplo, o tempo de medição, a influência da luz natural e a variação da eficiência beta.

O segundo objetivo deste trabalho foi a padronização de radionuclídeos, sendo escolhidos o ^{106}Ru e ^{57}Co . O ^{106}Ru possui um esquema de decaimento complexo e poucas citações na literatura. O ^{57}Co é usado como fonte de referência para a calibradores de dose.

1.2 Justificativa

Além de estudos para criação de métodos para quantificar ^{106}Ru na urina (PRASAD, 1994) e nas plantas (WILLEY, 2006) em regiões próximas a locais que sofreram um acidente nuclear, existem estudos para o uso do ^{106}Ru no tratamento de câncer de olhos. (HJORTENBERG, 1989; KOVACEVIC, 2005)

O ^{106}Ru tem uma meia-vida de $(371,5 \pm 2,1)$ d e decai 100% por emissão β^- com uma energia de 39,40 keV para o ^{106}Rh , com meia-vida de $(30,1 \pm 0,3)$ s, que imediatamente decai para o ^{106}Pd . (LNHB, 2014)

As emissões β de alta energia provenientes do decaimento do ^{106}Rh para o ^{106}Pd são usados em radioterapia para o tratamento de câncer de olhos onde serão colocadas nos olhos do paciente. (HJORTENBERG, 1989; KOVACEVIC, 2005) No Brasil, o uso do ^{106}Ru na medicina nuclear é muito recente. (MARCONI, 2013)

O ^{106}Ru não pode ser padronizado diretamente pelo método de contagem em coincidência ou anticoincidência. Entretanto, como o ^{106}Ru está em equilíbrio com o ^{106}Rh , a sua atividade pode ser determinada por meio da atividade do ^{106}Rh .

O ^{106}Ru também é usado no Programa Nacional de Intercomparação (PNI) desde que o programa começou a ser organizado pelo IRD em 1991. (TAUHATA, 2006; VIANNA, 1998) Participam das intercomparações organizadas pelo PNI, laboratórios que atuam na área ambiental. As amostras usadas pelo PNI são preparadas usando soluções calibradas, sempre que possível, padronizadas absolutamente pelo LNMRI.

Assim a padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ por um novo método é de grande importância para um Laboratório Nacional de Metrologia de Radionuclídeos, pois permite a comparação com os valores obtidos por outros métodos de padronização absoluta. Esta segurança é necessária para evitar erros de medição durante o tratamento de câncer e para avaliação dos laboratórios participantes do PNI.

Existe também a RESOLUÇÃO-RDC Nº 63, DE 18 DE DEZEMBRO DE 2009 da Agência Nacional de Vigilância Sanitária (ANVISA), que dispõe sobre as boas práticas de fabricação de radiofármacos que na seção II do capítulo II diz:

Art. 34. Deve ser elaborada uma lista dos equipamentos mais críticos (tais como balanças, estufas de despirogenização, calibradores de dose, filtros esterilizantes, etc.), cujos erros na leitura ou funcionamento podem potencialmente causar um prejuízo ao paciente que receberá o produto final.

§ 1º Estes equipamentos devem ser calibrados e testados em intervalos regulares, além de verificados diariamente, ou antes, do início da produção.

§ 2º Os resultados dos testes de verificação devem ser incluídos nos registros diários de produção.

Art. 35. Devem estar disponíveis equipamentos e dispositivos específicos para a medição da radioatividade, bem como os padrões de referência radioativa.

§ 1º Para a medida da meia-vida muito curta, a Autoridade Nacional competente deve ser contatada para a calibração do equipamento.

§ 2º Quando não for possível contatar a Autoridade Nacional competente, podem ser utilizados métodos alternativos, como procedimentos documentados.

A resolução da ANVISA reforça a necessidade da padronização de todos os radionuclídeos usados em medicina nuclear, como o ^{106}Ru , para calibração dos calibradores de dose.

Já o ^{57}Co é o radionuclídeo utilizado para a verificação diária dos calibradores de dose.(CNEN, 2013) Tendo fundamental importância no controle de qualidade dos calibradores usados na medicina nuclear e que, para exercer tal função, sua padronização se torna extremamente necessária.

O $^{106}\text{Ru/Rh}$ e o ^{57}Co também foram calibrados por outros métodos para validação do método de contagem em anticoincidência. A proposta inicial era que essa validação fosse feita pelo método de contagem em coincidência, porém devido a questões externas o sistema está temporariamente inoperante.

Como solução, buscamos por outros métodos que fossem compatíveis com os esquemas de decaimento dos radionuclídeos estudados. Para o ^{57}Co a validação foi feita com os métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra. Já a validação do $^{106}\text{Ru/Rh}$ foi feita pelo método de curva de eficiência.

O $^{106}\text{Ru/Rh}$ não pode ser medido pelo método pico-soma pois, devido aos seus decaimentos, as somas apresentadas não geram bons resultados. Também não foi medido pelo método padrão-amostra pelo fato do LNMRI não possuir nenhum padrão deste radionuclídeo, sendo a primeira vez que o laboratório está estudando o mesmo.

Além da padronização, também determinamos as probabilidades de emissão gama do $^{106}\text{Ru/Rh}$ e ^{57}Co . Os resultados obtidos neste trabalho foram comparados aos da literatura e estão disponíveis no Capítulo 5.

1.3 Organização do trabalho

A revisão bibliográfica está no Capítulo dois e, no Capítulo três encontra-se a fundamentação teórica do método e dos radionuclídeos usados neste trabalho. O Capítulo quatro explica a metodologia usada no trabalho e no Capítulo cinco são

apresentados os resultados e a discussões. A conclusão do trabalho está no Capítulo seis.

Capítulo 2

REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Método de Contagem em Antico incidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

BRYANT propôs o método de antio incidência pela primeira vez em 1962, para decaimento beta-gama pronto. Posteriormente, em 1967, BRYANT aplicou o método ao caso de emissores que possuem estados meta-estáveis com a emissão de radiação gama retardada e realizou a introdução da técnica de contagem em tempo vivo. (BRYANT, 1962; BRYANT, 1967; DA SILVA, 2008)

Em 1987, SANTRY e colaboradores realizaram a padronização do ^{67}Ga pelo método de contagem em antio incidência pela técnica do tempo vivo com tempo morto extensível. (SANTRY, 1987; DA SILVA, 2008)

DA SILVA et. al, em 2008, implementou pela primeira vez no Brasil o sistema de antio incidência $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$ com cronometragem em tempo vivo e tempo morto extensível. (DA SILVA, 2008) No mesmo ano realizou com colaboradores a padronização de diversos radionuclídeos como ^{51}Cr , ^{55}Fe , ^{241}Am e ^{131}I . (DA SILVA, 2008a; DA SILVA, 2008b)

OLIVEIRA, em 2012, realizou a padronização de radionuclídeos emissores de pósitrons por espectrometria gama com o método pico-soma e usou o método de contagem em antio incidência para comparar seus resultados. (OLIVEIRA, 2012)

Em 2012, DA SILVA et al, usaram o método de antio incidência para padronizar os radionuclídeos ^{177}Lu , ^{111}In e ^{123}I usados na medicina nuclear. (DA SILVA, 2012)

Em 2015, FITZGERALD usou a simulação de Monte Carlo para verificar a eficiência da extrapolação da reta que é tipicamente usada nos métodos de coincidência e anticoincidência. (FITZGERALD, 2015).

2.2 Padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$

Em 1970 o ^{106}Ru foi padronizado pelo método de contagem em coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ por KAWADA E KIMURA. (KAWADA, 1971)

HJORTENBERG *et al* em 1989, mediu a taxa de dose do ^{106}Ru para aplicação oftalmológica no tratamento de câncer. (HJORTENBERG, 1989)

Em 1994, PRASAD *et al* desenvolveram o método para estimar a quantidade de ^{106}Ru na urina. (PRASAD, 1994)

WOODS *et al* calibraram o ^{106}Ru pelo calibrador de radionuclídeos padrão secundário NPL em 1998. (WOODS, 1998)

Em 2005, KOVACEVIC propôs um método de medição do ^{106}Ru para aplicação no tratamento de câncer de olhos. (KOVACEVIC, 2005)

WILLEY e FAWCETT estudaram em 2006 a absorção do ^{106}Ru pelas plantas. (WILLEY, 2006)

E em 2010, KORUN fez a medição do ^{106}Ru em amostras finas pelo método de coincidência. (KORUN, 2010)

2.3 Padronização do ^{57}Co

Em 1966, TROUGHTON realizou a padronização absoluta do ^{57}Co com a técnica de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$. (TROUGHTON, 1966) No mesmo ano, GARFINKEL e HUTCHINSON realizaram a padronização do ^{57}Co com o método de contagem em coincidência $4\pi\text{X}\text{-}\gamma$. (GARFINKEL *et al*, 1966)

HAVELKA e SOCHOROVÁ realizaram em 2008 a padronização do ^{57}Co utilizando um software e o método convencional para contagem em coincidência. (HAVELKA, 2008) Também em 2008, SOCHOROVÁ *et al* padronizaram a atividade do ^{57}Co e outros radionuclídeos que decaem por captura eletrônica. (SOCHOROVÁ *et al*, 2008)

IWAHARA *et al* realizaram a padronização primária do ^{57}Co pelo método pico-soma em 2009. (IWAHARA, 2009)

KOSKINAS *et al*, em 2010, realizaram a padronização do ^{57}Co com dois métodos de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ diferentes. (KOSKINAS, 2010)

Em 2005, 2009 e 2012 foram publicados os resultados de três comparações-chaves promovidas pelo BIPM para o ^{57}Co que ocorreram durante os anos de 2004 e 2005, 2006 e 2007 e em 2008 e 2010. (RATEL, 2005; MICHOTE, 2009; MICHOTE, 2012) Nessas comparações cada laboratório nacional participou com um método absoluto diferente. Em 2010, ZIMMERMAN e PALM também divulgaram os resultados da comparação-chave promovida pelo BIPM. (ZIMMERMAN, 2010)

NOVKOVIC *et al* fizeram a medição direta da atividade do ^{57}Co pelo método pico-soma em 2012. (NOVKOVIC *et al*, 2012) No mesmo ano DA SILVA *et al* determinaram a meia-vida do ^{57}Co . (DA SILVA *et al*, 2012)

Capítulo 3

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

3.1 Método de Contagem em Anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

O método de contagem em anticoincidência surgiu como uma alternativa ao método de coincidência para decaimento beta-gama pronto e posteriormente foi aplicado ao caso de emissores que possuem estados meta-estáveis com a emissão de radiação gama retardada. (BRYANT, 1962; BRYANT, 1967)

Com a contagem em anticoincidência, os raios gama não correlacionados às partículas beta são contados e a taxa de contagem no canal de coincidência pode então ser obtida pela subtração entre a taxa de contagem gama total e a taxa de contagem não correlacionada. Com a introdução da técnica de cronometragem em tempo vivo, este método apresentou vantagens ao fazer as correções instrumentais eletronicamente e permitir trabalhar com o estado meta-estável que emite radiação gama retardada. (DA SILVA, 2008)

Na aplicação do método ao decaimento beta-gama pronto, somente os sinais provenientes de eventos gama que precedem ou sucedem sinais provenientes de eventos beta em um intervalo maior que 10^{-10} s, são aceitos como eventos gama em anticoincidência. O intervalo menor que 10^{-10} s é considerado para os radionuclídeos que decaem prontamente, na contagem em coincidência. (BRYANT, 1962; DA SILVA, 2008)

Com o método de anticoincidência aplicado ao decaimento beta-gama, as taxas de contagem de cada detector serão N_β e N_γ , respectivamente, contadas juntamente com os eventos gama não correlacionados aos eventos beta detectados. Então, a contagem em anticoincidência é complementar à técnica de coincidência. (DA SILVA, 2008)

As taxas de contagem nos três canais podem ser representadas pelas equações 3.1, 3.2 e 3.3.

$$N_{\beta} = N_0 \sum_r a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (3.1)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_r a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (3.2)$$

$$N_{anc} = N_0 \sum_r a_r \left[(1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (3.3)$$

Onde:

N_0 é a atividade da fonte que esta sendo medida;

N_{β} , N_{γ} e N_{anc} são as taxas de contagem observadas nos canais β , γ e de anticoincidência, corrigidos para radiação de fundo, decaimento, e perdas por tempo morto;

$\varepsilon_{\beta r}$ e $\varepsilon_{\gamma r}$ são as eficiências dos detectores β e γ para o ramo r do decaimento β .

a_r é a intensidade β do ramo r ;

α_r é o coeficiente de conversão interna dos raios γ associado com o ramo β_r ;

$\alpha_{\beta er}$ é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão associada com o ramo β_r ;

$\varepsilon_{\beta\gamma r}$ é a eficiência do detector beta aos raios γ associada com o ramo β_r .

A taxa de contagem em anticoincidência, N_{anc} , pode ser obtida diretamente da taxa de contagem gama total N_{γ} e da taxa de contagem em coincidência N_c , sendo representada pela equação 3.4:

$$N_{anc} = N_{\gamma} - N_c \quad (3.4)$$

A atividade da amostra pode então ser determinada usando as equações 3.5 e 3.6.

$$N_c = A \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma \quad (3.5)$$

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad (3.6)$$

No decaimento beta-gama pronto pode-se medir aceitando-se somente sinais gama que precedam ou sigam a detecção de partículas beta em um intervalo de tempo mínimo. Isto pode ser conseguido atrasando-se o sinal gama relativamente ao sinal beta de um valor δ e fechando a “*porta*” de entrada do canal gama por um intervalo de tempo 2δ após a detecção de cada partícula beta. Para a escolha de δ aplica-se o mesmo critério usado para a escolha do tempo de resolução do sistema de coincidência levando em consideração o deslocamento em tempo e a flutuação do atraso beta-gama. Neste caso o registro de qualquer evento gama correlacionado é evitado. (DA SILVA, 2008)

3.1.1 Tempo morto não estendível

No caso da emissão de raio gama retardado, é necessário somente que o canal de contagem gama permaneça fechado por um intervalo de tempo adicional δ' após a detecção da partícula beta do decaimento beta-gama pronto. Então a probabilidade de se detectar algum evento coincidente é reduzida a um valor tão pequeno quanto possível dentro das condições práticas de 2^{-m} , considerando $(2\delta + \delta')$ igual a m meias-vidas do estado intermediário. O maior limite prático para a meia-vida de um estado isomérico é provavelmente de alguns milisegundos, determinado pela estatística de contagem, porque uma longa meia-vida requer um grande período fechado para a “*porta*” do canal de anticoincidência e uma baixa taxa de contagem se as perdas devido a tempo morto permanecerem pequenas. O que impossibilita a aplicação do método. (DA SILVA, 2008)

As correções aplicadas às taxas de contagem nos canais beta e gama são as mesmas do método de coincidência, ou seja, correção de tempo morto e de radiação de fundo. Para o canal beta a taxa de contagem será, considerando o tempo morto não estendível, representada pela equação 3.7.

$$N_{\beta} = \frac{N'_{\beta}}{1 - \tau_{\beta} N'_{\beta}} - b_{\beta} \quad (3.7)$$

Onde:

N_{β} é a taxa de contagem no canal beta corrigida para tempo morto;

N'_{β} é a taxa de contagem observada no canal beta;

b_{β} é a taxa de contagem devido a radiação de fundo; e

τ_{β} é o valor numérico do tempo morto no canal beta.

E será representada pela equação 3.8, para o canal gama.

$$N_{\gamma} = \frac{N'_{\gamma}}{1 - \tau_{\gamma} N'_{\gamma}} - b_{\gamma} \quad (3.8)$$

Onde:

N_{γ} é a taxa de contagem no canal gama corrigida para tempo morto;

N'_{γ} é a taxa de contagem observada no canal gama;

b_{γ} é a taxa de contagem devido a radiação de fundo; e

τ_{γ} é o valor numérico do tempo morto no canal gama.

No caso do método de coincidência, as correções aplicadas aos canais beta e de coincidência constituem, por extensão, uma compensação. Isto não ocorre no caso da contagem em anticoincidência, onde a correção de tempo morto é importante. Em seu primeiro trabalho tratando da aplicação do método de anticoincidência ao decaimento beta-gama pronto em 1962, Bryant propôs uma equação, 3.9, simplificada como aproximação para a taxa de anticoincidência. (BRYANT, 1962)

$$N_{ac} \approx \frac{N'_{ac}}{1 - N_{\beta}(\tau_{\beta} + 2\delta)} - b_{ac} \quad (3.9)$$

Onde:

N_{anc} taxa de contagem anticoincidência real;

N'_{anc} taxa de contagem anticoincidência observada;

N_{β} taxa de contagem no canal beta; e

b_{anc} taxa de contagem de radiação de fundo.

Bryant assume tempo morto não estendível nos canais individuais e a entrada de contagem fechada por um intervalo de tempo igual a duas vezes o atraso na via gama após a detecção de cada partícula beta. (BRYANT, 1962)

Em um trabalho posterior destinado a padronização de radionuclídeos que decaem pela emissão de raios gama retardados, em 1967 Bryant propôs uma equação, 3.10, mais sofisticada incluindo a correção de tempo morto para a contagem em anticoincidência. A correção de radiação de fundo é uma simples subtração e o tempo morto nos canais beta e gama é novamente assumido ser não estendível. (BRYANT, 1967)

$$N_{ac} \approx \frac{N'_{ac}(1 + N_{\beta}\tau_{\beta})}{\exp(-N_{\beta}(2\delta + \delta')) - N'_{ac}\tau_{\gamma}(1 + N_{\beta}\tau_{\beta})} - b_{ac} \quad (3.10)$$

Onde:

N_{anc} taxa de contagem anticoincidência real;

N'_{anc} taxa de contagem anticoincidência observada;

N_{β} é a taxa de contagem no canal beta;

b_{anc} é a taxa de contagem de radiação de fundo no canal de anticoincidência;

τ_{γ} é o valor numérico do tempo morto no canal gama;

τ_{β} é o valor numérico do tempo morto no canal beta;

δ é o valor numérico do atraso da via gama; e

δ é m vezes a meia-vida do estado isomérico.

3.1.2 Tempo morto estendível

Como a correção de tempo morto para o canal de anticoincidência é bastante difícil de ser estabelecida de forma a garantir uma boa exatidão dos resultados, a contagem em tempo vivo tem sido introduzida, utilizando na configuração do sistema, um circuito com tempo morto estendível. Em princípio é esperado que, com a contagem em tempo vivo, as correções instrumentais de tempo morto sejam feitas eletronicamente. (DA SILVA, 2008)

Este método consiste inicialmente em atrasar os sinais gama, relativamente aos sinais beta, de um valor maior do que qualquer flutuação em tempo dos sinais beta-gama. Então, ambos os canais, sinais lógicos beta e gama dispararão um circuito gerador de tempo morto estendível. Este tempo morto estendível τ é ajustado de forma a ter um valor maior que todo o atraso ou flutuação de tempo entre os sinais beta-gama. No geral, τ é fixado entre 2 e 4 μs . Deste modo, os pulsos de saída deste circuito são aplicados como sinal de chaveamento que bloqueia a cronometragem de tempo vivo bem como a entrada de sinais nos canais beta e gama. (DA SILVA, 2008)

No caso do LNMRI o atraso de 4 μs entre o disparo e o acionamento das portas é devido ao circuito acionador do tempo morto. (DA SILVA, 2008)

No LNMRI, o sistema de anticoincidência usa, para geração do tempo vivo, um oscilador a quartzo de 1 MHz como referência de tempo. Quando o sistema está apto a contar um pulso na entrada do módulo eletrônico, gera um tempo morto mínimo e simultaneamente envia um sinal ao contador para que a contagem C seja registrada. O tempo morto é acionado a cada chegada de um novo pulso na entrada do módulo

eletrônico, MTR2. Deste modo o tempo T_a que o sistema está livre pode ser descrito pela equação 3.11: (DA SILVA, 2008)

$$T_a = \left(\frac{F}{f_{\text{ref}}} \right) - C.d \quad (3.11)$$

Onde:

f_{ref} é a frequência de referência

F é número de pulsos coletados no canal de contagem e representa o intervalo de tempo no qual o sistema não está paralisado pelo tempo morto

C é a contagem durante o período de amostragem

d é a largura do pulso.

$C.d$ é a correção devido à largura do pulso gerado pelo módulo eletrônico, MTR2.

Para reduzir tal correção, a largura do pulso gerado pelo módulo eletrônico é fixada em 5 ns . A taxa de contagem real será representada pela equação 3.12. (DA SILVA, 2008)

$$N = C/T_a \quad (3.12)$$

A atividade de um dado radionuclídeo pode ser determinada pela equação clássica do método de coincidência, e que difere do método de anticoincidência, apenas na taxa de contagem N_c , que neste caso passa a ser denominada taxa de contagem no canal comum. Ela é determinada, para uma dada “*janela*” de contagem gama, como a diferença entre a taxa de contagem gama total e a taxa de contagem gama de eventos não correlacionados, ou que não estejam em coincidência, que pode ser representada pela próxima equação, 3.13. (DA SILVA, 2008)

$$A = \frac{N_{\beta} N_{\gamma}^w}{N_{\gamma}^w - N_{\gamma}^{wnc}} \quad (3.13)$$

Onde:

N_{β} é a taxa de contagem no canal beta corrigida para radiação de fundo

N_{γ}^w É taxa de contagem gama na janela corrigida para radiação de fundo

N_{γ}^{wnc} É a taxa de contagem gama de eventos não correlacionados corrigida para radiação de fundo.

Chamamos de “*janela*”, o intervalo de energia que corresponde a um ou mais picos do radionuclídeo medido. Ela pode ser estabelecida por meio de um discriminador, onde determinamos o início e o fim do intervalo. Com isso, a eletrônica só vai identificar as energias que estiverem dentro desse intervalo pré-estabelecido.

Nesse trabalho a atividade da fonte foi obtida pela extrapolação de uma função linear N_{β} por $(1 - \varepsilon_{\beta})$. Onde N_{β} é a taxa de contagem no canal beta corrigida para radiação de fundo e ε_{β} é a eficiência beta. Quando extrapolamos $(1 - \varepsilon_{\beta}) = 0$, a atividade é aproximadamente N_{β} .

3.1.3 Método da extrapolação da eficiência

Campion foi o primeiro pesquisador a propor o método de extrapolação da eficiência. (CAMPION, 1959) Esse método usa a dependência da atividade aparente e o parâmetro de eficiência e assim faz a extrapolação da eficiência beta para 100%.

A união das três equações principais do método de contagem em coincidência (IWAHARA, 1979), resulta na equação 3.14.

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} = N_0 \left(1 + \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \right) K \quad (3.14)$$

Onde K está expresso na equação 3.15.

$$K = \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\lambda}}{(1 + \alpha)} \quad (3.15)$$

Analisando a equação 3.14 e fazendo $\varepsilon_{\beta} \approx \frac{N_c}{N_{\gamma}}$ observamos que $\varepsilon_{\beta} \rightarrow 1$,

$$\frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \rightarrow 0 \text{ e } \frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} \rightarrow N_0.$$

Onde $\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c}$ é a atividade aparente e $\frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}}$ é o parâmetro de eficiência.

Anos depois, Baerg e outros autores também aplicaram o método e comprovaram a sua eficácia. (BAERG, 1973; MIYAHARA et al, 1986; DA SILVA et al, 2008)

Quando se estabelece a função de dependência (f) entre a contagem no canal beta N_{β} e $\frac{N_c}{N_{\gamma}}$, que geralmente é uma reta, os resultados obtidos são semelhantes.

$$N_{\beta} = N_0 \cdot f\left(\frac{N_c}{N_{\gamma}}\right), \text{ quando } \frac{N_c}{N_{\gamma}} \rightarrow 1, N_{\beta} \rightarrow N_0$$

Esse método se aplica a emissores beta gama. Para outros tipos de decaimento as correções adicionais devem ser consideradas.

3.1.4 Detector Cintilador Iodeto de Sódio [NaI(Tl)]

Por volta de 1947, com o aparecimento das válvulas fotomultiplicadoras, que são capazes de converter os fótons de cintilação em elétrons que são acelerados e multiplicados por uma série de eletrodos denominados “dinodos”, esse processo de detecção tornou-se muito importante, sendo atualmente muito utilizado. O processo de cintilação é um dos métodos disponíveis para detecção e espectroscopia de várias radiações. (LIMA, 2006)

O contador cintilador usa processo de geração de luz para contar eventos da radiação. Ele pode medir radiação gama. Tipicamente, o elemento sensor de radiação gama é um cristal feito de Iodeto de sódio dopado com tálio [NaI(Tl)]. A energia gama incidente é depositada e convertida em um fóton de luz. O fóton gerado é na região azul do espectro óptico, com sua intensidade sendo proporcional à energia depositada pela radiação do raio gama incidente. Uma vantagem do cintilador é sua alta eficiência de contagem, por raios gamas incidentes no detector. (LIMA, 2006)

É importante que o cristal fique bem protegido do ambiente porque é higroscópico e absorve vapor de água contido no ar. Esse acontecimento faz com que o cristal fique inutilizado, entretanto os mesmos são fabricados hermeticamente selados, o cristal fica dentro de uma capa de alumínio com janela de vidro. A capa efetivamente elimina a absorção das partículas beta e alfa do alcance do cristal. Os cristais ficam meio amarelos com o tempo, afetando sua eficiência e resolução. Um guia de luz é colocado entre o cintilador e a fotomultiplicadora que serve de condutor óptico e acoplamento. (LIMA, 2006)

O cristal Iodeto de Sódio NaI(Tl) é sensível à radiação, se exposto por um longo tempo a altos valores há uma degradação na performance da cintilação. Danos tem sido observado com níveis de radiação maiores de um gray. O cristal não deve ser exposto à radiação ultravioleta de lâmpadas fluorescentes ou similares. (LIMA, 2006)

O cristal Iodeto de sódio é ativado com a adição da concentração muito baixa de tálio (Tl) em torno de 0,094 g para cristal de 2 pol de diâmetro por 0,25 pol de comprimento, com peso total de 47,24 g. O Iodeto de tálio como material químico puro é tóxico, uma quantidade de mais de 1 g pode levar à morte. Se o compartimento é danificado, deve-se manuseá-lo com luvas de borracha e retornar o detector danificado

para o “fabricante” ou guardar em local apropriado de acordo com regulamentação federal. (LIMA, 2006)

3.1.5 Cintilação

A detecção por cintilação consiste em converter a energia depositada pela radiação incidente em energia luminosa, fótons de luz, através de processos luminescentes, em pulsos elétricos por meio de uma fotomultiplicadora. (BACCARELLI, 2003)

Os processos luminescentes podem ser classificados como: (LIMA, 2006)

- Fluorescência: quando sua emissão de luz ocorre durante a excitação em um tempo menor que 10^{-8} s;
- Fosforescência: quando sua emissão de luz ocorre depois de cessado a excitação (depois de 10^{-8} s) geralmente tardio e com comprimento de onda maior;
- Fluorescência Atrasada: quando sua emissão se dá muito tempo após a excitação e no mesmo espectro da fluorescência.

O material cintilador ideal deve possuir as seguintes propriedades: (BACCARELLI, 2003; LIMA, 2006)

- Deve converter a energia cinética das partículas carregadas em luz detectável com alta eficiência;
- Esta conversão deve ser linear – a luz produzida deve ser proporcional à energia depositada;
- Meio deve ser transparente a luz emitida, a fim de permitir uma boa coleta de luz;
- Tempo de decaimento da luminescência deve ser o menor possível para que pulsos rápidos possam ser gerados;

- Material deve ser de boa qualidade óptica;
- Índice de refração deve ser próximo ao do vidro para permitir eficiente acoplamento do cintilador de luz com a fotomultiplicadora;
- Poder ser obtido em diferentes tamanhos e formas.

Dentre os materiais cintiladores destacam-se os cristais alcalinos, plásticos e líquidos orgânicos. Se o objetivo é a detecção de radiação gama os mais usados são os cristais inorgânicos ativados, como NaI(Tl) ou CsI(Tl), em razão do elevado número atômico de seus constituintes. Para detectar partículas beta usa-se, preferencialmente, materiais orgânicos que, por não serem higroscópicos, não necessitam ser selados além de poderem estar na forma líquida, para melhor detecção de beta de baixa energia. (BACCARELLI, 2003)

A cintilação líquida permite calibrar radionuclídeos com diferentes tipos de decaimento. Fornece resultados exatos e baixas incertezas, podendo ser comparado a um método direto, além de realizar uma calibração em um curto espaço de tempo e usar equipamentos automatizados. (LOUREIRO, 2000; REZENDE, 2009)

O coquetel de cintilação, ou solução cintiladora, tem a função de produzir fótons, com comprimentos de ondas adequadas à máxima sensibilização do tubo fotomultiplicador. (LOUREIRO, 2000; REZENDE, 2009)

Existem também as soluções cintiladoras comerciais, como o INSTAGEL (permite adicionar dissoluções orgânicas e inorgânicas, com incorporação de até 20% de fase aquosa), o HISAFE e ULTIMA GOLD (mantém homogeneidade com a incorporação de até 25% de fase aquosa e proporciona mais eficiência de contagem). (LOUREIRO, 2000; REZENDE, 2009)

3.2 Método Curva de Eficiência

O método da curva de eficiência possibilita uma comparação com os valores de eficiência obtidos de padrões medidos em um detector para obter indiretamente um valor de eficiência para o radionuclídeo que se deseja calibrar. É um método bastante eficiente, pois fornece valores compatíveis além de ser de rápida execução. (TAUHATA,2003; ARAÚJO, 2015)

Consiste em uma metodologia para obter a eficiência de fotopico de um sistema de espectrometria γ ou X. A eficiência de fotopico é definida como a relação entre a taxa de radiação detectada pelo sistema e a taxa emitida pela fonte. Com o uso de fontes padrões calibradas de energias e intensidades conhecidas, usando o mesmo sistema de detecção e a mesma geometria de contagem, obtemos a curva de eficiência em função da energia, (TAUHATA, 2003) através da equação 3.16:

$$\varepsilon = \frac{S}{A.m.T_v.P_\gamma} \quad (3.16)$$

Onde:

S = área do fotopico de energia (E) de uma fonte padrão

T_v = tempo vivo de contagem (s)

P_γ = probabilidade de emissão gama de energia (E) do fotopico

A= atividade da fonte padrão em becquerel

m = massa da fonte padrão

Com os dados acima obtém-se a curva de eficiência que será dada por meio do ajuste de pontos experimentais pelo LABFIT® que fornecerá um ajuste matemático para cada tipo de curva. O formato do ajuste matemático da curva de eficiência utilizado é escolhido de modo arbitrário por quem utiliza o programa. Alguns critérios de escolha são levados em consideração tais como: comportamento físico das grandezas ou

parâmetros envolvidos e a expressão matemática em que o valor do fator de correlação (r^2) do ajuste é o mais próximo possível de 1. (TAUHATA, 2003, ARAÚJO, 2015)

De posse da curva de eficiência a atividade da fonte pode ser encontrada por meio da equação 3.17. Para isso a amostra deve ter a mesma geometria das fontes padrões utilizadas na construção da curva de eficiência, e também deve ser posicionada em relação ao detector da mesma forma que os padrões medidos.

$$A = \frac{S}{\varepsilon.m.T_v.P_\gamma} \quad (3.17)$$

Onde:

S = área do fotopico de energia (E) da amostra

T_v = tempo vivo de contagem da amostra (s)

P_γ = probabilidade de emissão gama de energia (E) do fotopico

m = massa da amostra

ε = eficiência do fotopico de energia (E) da amostra

A atividade encontrada deve ser corrigida pelo fator de decaimento em função da data de medição e da data de referência.

3.3 Método Comparação Padrão-amostra

O método de comparação padrão-amostra possibilita uma comparação entre as áreas dos fotopicos obtidos na medição do padrão com as áreas obtidas na medição da amostra do radionuclídeo que se deseja calibrar.

É eficiente, fornece valores compatíveis e pode ser usado para qualquer tipo de decaimento radioativo, desde que se tenha um padrão do mesmo radionuclídeo. É necessário também que a amostra e o padrão tenham a mesma geometria e que ambos

sejam medidos sob as mesmas condições, como por exemplo, o posicionamento da fonte em relação ao detector.

A atividade da amostra pode ser obtida por meio da seguinte equação:

$$A = \frac{A_{pad} m_{pad} S'_{amostra} T_{vpad}}{m_{amostra} S_{pad} T_{vamostra}} \quad (3.18)$$

Onde:

A_{pad} = atividade da fonte padrão em becquerel

m_{pad} = massa da fonte padrão

S_{pad} = área do fotopico de energia (E) de uma fonte padrão

T_{vpad} = tempo vivo de contagem da fonte padrão (s)

$m_{amostra}$ = massa da amostra

$S_{amostra}$ = área do fotopico de energia (E) da amostra

$T_{vamostra}$ = tempo vivo de contagem da amostra (s)

A atividade obtida deve ser corrigida pelo fator de decaimento em função da data de medição e da data de referência.

3.4 Método Pico-soma

O método pico-soma permite medições absolutas de atividade em radionuclídeos que emitam pelo menos dois fótons sob regime de coincidência. Esse método foi proposto inicialmente por Brinkman, onde ele demonstra em seu trabalho que a atividade de um radioisótopo que emite dois raios gama em coincidência pode ser obtida a partir das áreas sobre os dois fotopicos, a área do pico-soma e uma extrapolação da contagem para energia zero (BRINKMAN, 1963; OLIVEIRA, 2012)

As áreas sobre os fotopicos correspondentes ao γ_1 e γ_2 e ao pico-soma $\gamma_1+\gamma_2$ são dadas por:

$$A_1 = N \cdot e_1 \cdot (1 - t_2) \quad (3.19)$$

$$A_2 = N \cdot e_2 \cdot (1 - t_1) \quad (3.20)$$

$$A_{12} = N \cdot e_1 \cdot e_2 \quad (3.21)$$

Onde:

A_1 e A_2 = áreas dos fotopicos de um isótopo que emita dois raios gama em coincidência

A_{12} = área sobre o pico-soma

N = atividade absoluta da fonte

e_1 e e_2 = eficiência do fotopico para γ_1 e γ_2

t_1 e t_2 = eficiências totais de detecção para γ_1 e γ_2

Combinando as equações a área total do espectro (T), temos a equação que representa a equação geral do pico-soma (OLIVEIRA, 2012)

$$N = \frac{A_1 A_2}{A_{12}} + T \quad (3.22)$$

Esta equação é usada para determinação da atividade absoluta de radionuclídeos que possuam pelo menos dois gamas em coincidência em seu esquema de decaimento. Esta mesma equação pode usada para a padronização de emissores β^+ puros ou $\beta^+-\gamma$, desde que a geometria de medição seja aproximadamente 4π e também para emissores X- γ (OLIVEIRA, 2012).

No LNMRI foram padronizados absolutamente por este método vários radioisótopos utilizados em medicina nuclear tais como: ^{18}F , ^{65}Zn , ($^{68}\text{Ge}+^{68}\text{Ga}$) e ^{51}Cr calibrados com boa precisão por (OLIVEIRA, 2012; ALMEIDA, 2007).

Iwahara e colaboradores demonstraram em seu artigo de 2009 as possíveis combinações de pico-soma para o ^{57}Co de acordo com seu esquema de decaimento.

(IWAHARA, 2009) A combinação que melhor corresponde ao método, para o ^{57}Co , está representada na equação 3.23, e foi a adotada neste trabalho.

$$N_0 = N_T + \frac{N_x N_y}{N_{xy}} \quad (3.23)$$

Onde:

N_0 = atividade absoluta da fonte

N_T = taxa de contagem total do espectro

N_x = taxa de contagem da emissão X de 6,40 keV

N_y = taxa de contagem da emissão γ de 122,06 keV

N_{xy} = taxa de contagem do pico-soma de 128,46 keV

3.5 Determinação da Probabilidade de Emissão Gama

A probabilidade de emissão gama é o resultado da relação entre a área do fotopico de uma determinada energia e o produto da eficiência para a mesma energia, tempo vivo de contagem, massa e a atividade. (DELGADO, 2000)

Para determinar as probabilidades de emissão gama precisamos das eficiências de cada energia, elas são encontradas pela curva de eficiência usando o software LABFIT®. É importante que a fonte tenha a mesma geometria e seja medida no mesmo posicionamento em relação ao detector, das fontes padrões utilizadas na construção da curva de eficiência. (DELGADO, 2000)

A fonte utilizada deve ser calibrada e a sua atividade e massa são obtidas no seu certificado de calibração. As áreas dos fotopicos e o tempo vivo de contagem são obtidos no espectro de contagem. Para determinar as probabilidades de emissão gama utilizamos a equação 3.24. (DELGADO, 2000, ARAÚJO,2016)

$$P_\gamma = \frac{S}{\varepsilon.m.T_v.A} \quad (3.24)$$

Onde:

S = área do fotopico de energia (E)

T_v = tempo vivo de contagem (s)

m = massa da fonte

ε = eficiência do fotopico de energia (E)

A = atividade da fonte

3.6 Radionuclídeos Padronizados

Neste trabalho foram padronizados três radionuclídeos: ^{106}Ru , ^{57}Co e o $^{166\text{m}}\text{Ho}$.

3.6.1 Rutênio -106

O Rutênio 106 ou ^{106}Ru decai 100% por emissão β^- com uma energia de 39,40 keV para o Ródio 106. Sua meia-vida é de 371,5 dias. (LNHB, 2014) O ^{106}Ru está em equilíbrio com o ^{106}Rh , que tem uma meia vida de 30,1 s e decai para o ^{106}Pd . O esquema de decaimento do $^{106}\text{Ru/Rh}$ está na figura 3.3.

3.6.2 Cobalto-57

O Cobalto-57 ou ^{57}Co tem uma meia-vida de 271,80 dias e decai 99,82% por captura eletrônica, para estados excitados do ^{57}Fe (Ferro-57), o qual retorna ao seu estado estável emitindo dois fótons, 136,47 keV e 122,06 keV, com intensidades de 11%, 89%, respectivamente. (LNHB, 2014) O esquema de decaimento está representado na figura 3.4.

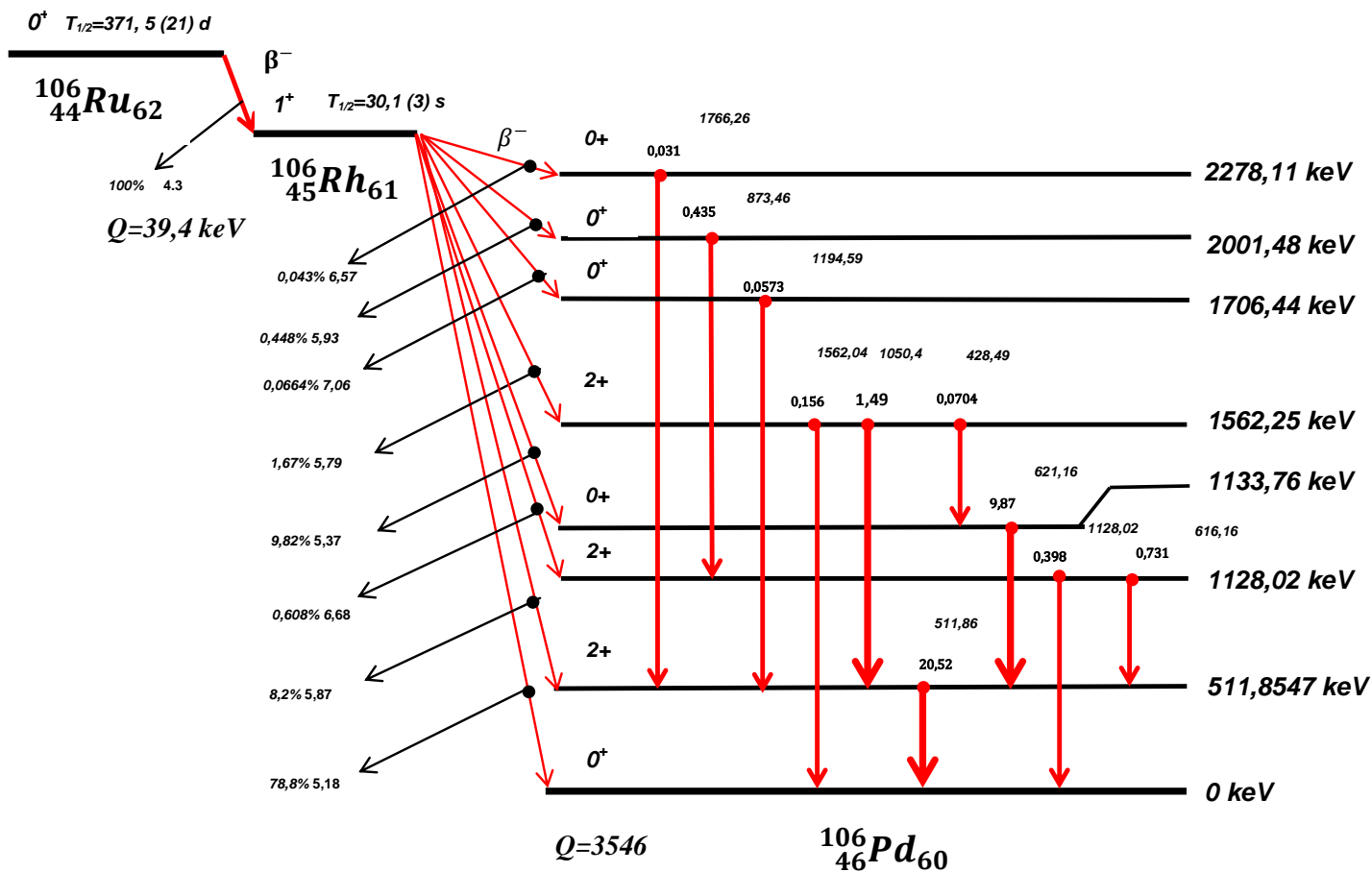


Figura 3.1 – Esquema de decaimento do $^{106}\text{Ru/Rh}$. (Adaptado de LNHB, 2014)

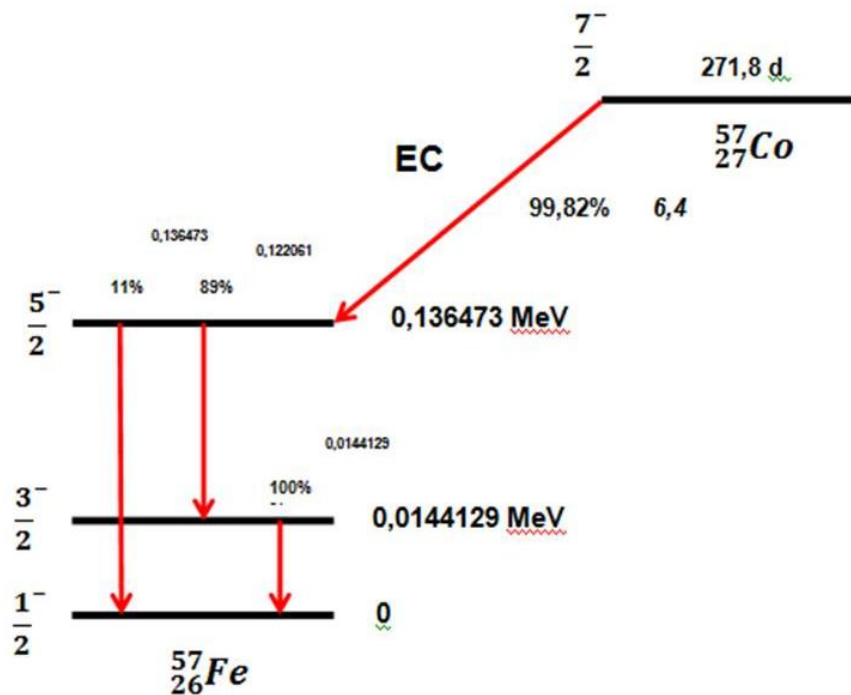


Figura 3.2 – Esquema de decaimento do ^{57}Co . (Adaptado de LNHB, 2014)

3.6.3 Hólmio-166m

O Hólmio-166m ou ^{166m}Ho tem uma meia-vida de 1200 anos e decai por emissão β^- para os estados excitados do ^{166}Er (érbio-166), com diversas emissões gama intensas e bem distribuídas na faixa de 80 keV a 1400 keV. (LNHB, 2016; BERNARDES, 2001) O esquema de decaimento está representado na figura 3.5 e todas as energias estão em keV..

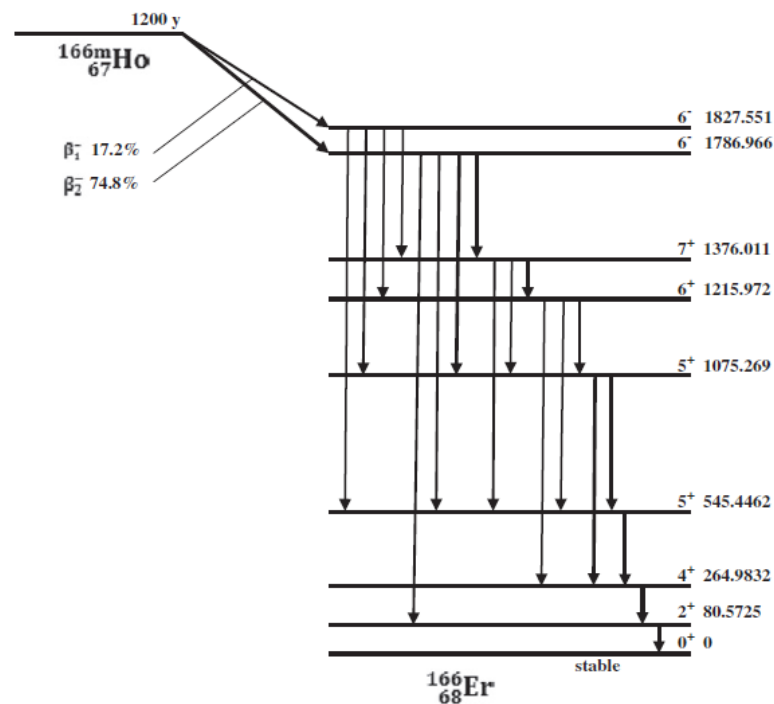


Figura 3.3 – Esquema de decaimento do ^{166m}Ho . (SHÖNFELD, 1999)

3.7 Estimativa das Incertezas de Medição

As incertezas de medição podem ser classificadas em dois grupos, tipo A e tipo B. As incertezas do tipo A são provenientes da dispersão estatística dos resultados. As incertezas do tipo B são provenientes de todos os outros fatores que interferem na medição. (ISO GUM, 2008)

A incerteza padrão combinada (u_c) é obtida pela raiz quadrada da soma quadrática de todos as componentes do tipo A e do tipo B, cada uma multiplicada pelo seu

coeficiente de sensibilidade, como demonstrado na equação 3.25. (ISO GUM, 2008; DA SILVA, 2008)

$$u_c^2(y) = \sum_1^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(X_i) \quad (3.25)$$

Para determinar a incerteza expandida (U), devemos multiplicar a incerteza combinada pelo fator de abrangência k , conforme a equação 3.26. Neste trabalho o fator de abrangência k usado foi igual a 2,00 para a probabilidade de abrangência de cerca de 95,45%. (ISO GUM, 2008; DA SILVA, 2008, VIM, 2012)

$$U = k \cdot u_c \quad (3.26)$$

Capítulo 4

MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 Melhorias aplicadas ao sistema

O sistema de anticoincidência implantado no LNMRI, (DA SILVA, 2008) resultado de um projeto de cooperação com o Laboratório Henri Becquerel (LNHB), embora funcionasse bem e com bons resultados, ainda apresentava possibilidades de melhoria, principalmente na parte de redução do ruído e da vedação óptica, que atrapalha as medições de baixa energia. Assim o grupo de pesquisadores do LNMRI estudou algumas oportunidades de melhorias no sistema que foram aplicadas para realização deste trabalho.

As duas fotomultiplicadoras do sistema foram trocadas por outras mais sensíveis à luz emitida pelo detector à cintilação líquida, aumentando a sensibilidade do sistema. Também foram realizadas mudanças na vedação óptica e na vedação da radiação externa.

Para verificar a eficácia das melhorias aplicadas, foi feita a medição de uma solução de hólmio-166m antes das mudanças e outra medição após as mudanças. O ^{166m}Ho foi escolhido por ser considerado estável devido a sua meia-vida longa de (1.200 ± 180) a. (LNHB, 2016) Assim, foi possível utilizar a mesma solução e amostra nas duas medições.

4.2. Métodos Utilizados para a Padronização

Para a padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ e ^{57}Co foram usados alguns dos métodos disponíveis no LNMRI. Para o ^{57}Co a padronização foi feita com os métodos de contagem em anticoincidência, pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra. A

padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ foi feita pelos métodos de contagem em anticoincidência, e curva de eficiência. Além da padronização, as probabilidades de emissão gama do $^{106}\text{Ru/Rh}$ e do ^{57}Co também foram determinadas.

4.2.1 Arranjo Experimental do Método de Contagem em Anticoincidência

A instrumentação para o uso do método de anticoincidência foi composta por um detector à cintilação em meio líquido com geometria 4π , duas fotomultiplicadoras e um detector cintilador NaI(Tl). (DA SILVA, 2008)

Todas as células de contagem foram feitas de polietileno e pintadas com uma tinta a base de óxido de titânio (TiO) a fim de refletir a luz. Os frascos de cintilação, contendo a solução radioativa e a solução cintiladora, são colocados dentro dessas células. A variação da eficiência β é feita por discriminação eletrônica.

Os principais componentes utilizados no sistema de anticoincidência foram os módulos eletrônicos listados a seguir:

Canal beta

- Detector à cintilação líquida
- Pré-amplificadores
- Gerador de tempo morto – LNHB – MTR2
- Amplificador – Ortec – 572A
- Somador – Ortec – 433A
- Fontes de alta tensão – Ortec – 556
- Fotomultiplicadoras – Enterprises Ltda - modelo 9929^a

Canal gama

- Detector NaI(Tl) – Harshaw – 3" x 3"

- Gerador de tempo morto – MTR2
- Amplificador – Ortec – 572
- Fonte de alta tensão – Ortec – 556
- Atraso – Ortec – 427 A
- MI-1 – LNHB – Unidade lógica que permite selecionar a contagem da janela gama a contagem gama não coincidente
- MI-2 – Atua como gerador de tempo vivo (para todo o sistema)
- MI-3 – Atua como discriminador no canal gama
- Oscilador – 1 Mhz – IRD/LNMRI (para todo o sistema)

Os módulos MTR2, MI-1, MI-2 e MI-3 foram desenvolvidos por Bouchard e colaboradores e implementados LNHB. (BOUCHARD, 2000)

A figura 4.1 ilustra, por meio de um diagrama de blocos, o método de contagem em anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

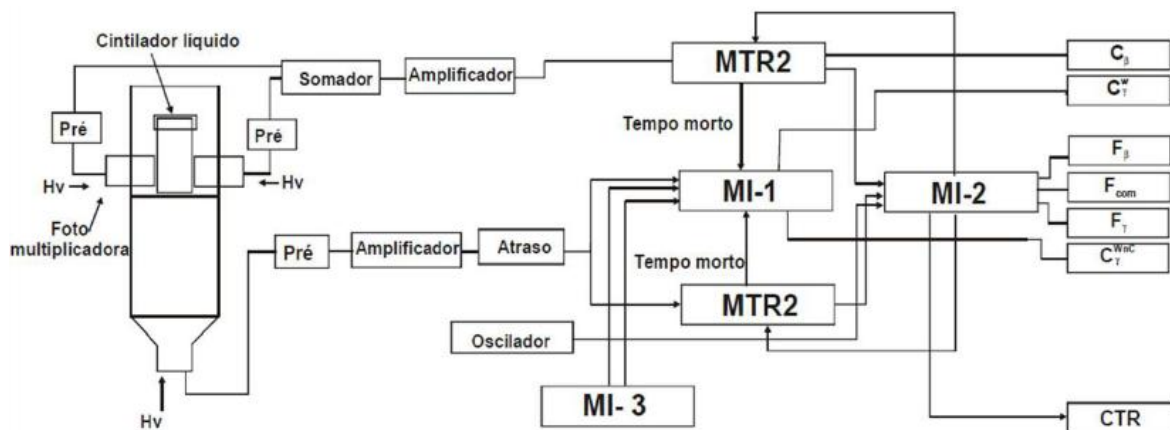


Figura 4.1 – Diagrama de blocos do método de contagem em anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$. (DA SILVA, 2008)

4.2.2 Arranjo Experimental para medição do $^{106}\text{Ru/Rh}$

Para a medição do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelos métodos da curva de eficiência e padrão-amostra e também para determinação de suas probabilidades de emissão gama foi usado o mesmo arranjo experimental, que será descrito a seguir. Esse arranjo é conhecido no LNMRI como sistema "d3 rotina".

O sistema d3 rotina é constituído dos seguintes componentes eletroeletrônicos:

- Detector HPGe coaxial modelo: GMX 70 P495 série:51-TN50979A
- Pré-Amplificador ORTEC® série:51-TN50979A
- Amplificador ORTEC® modelo 572
- Um analisador Multicanal (MCA) ORTEC® modelo 927
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO® II fabricado pela ORTEC®
- Fonte de alta tensão HV da ORTEC® modelo 459

A composição dos módulos que integram o sistema pode ser visualizada, por meio de um diagrama de blocos, na figura 4.2.

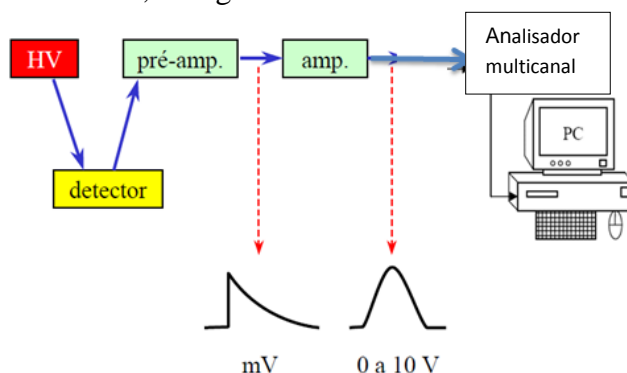


Figura 4.2 – Diagrama de blocos do sistema d3 rotina. (ARAÚJO, 2015)

A blindagem utilizada é composta por tijolos de chumbo, que compõe uma geometria cúbica apoiada sobre uma estrutura de aço. O seu interior é revestido com folhas de cádmio e de cobre nesta ordem respectivamente, com um volume livre interno

de 1 m³ e na parte inferior se localiza um furo para a entrada do detector. Os suportes, fixadores de geometria, foram projetados e confeccionados no IRD. O nitrogênio líquido é necessário para manter o detector sob a temperatura de funcionamento adequada. (DELGADO, 2000)

Para a execução das medições foi necessário utilizar um suporte fixador de geometria, uma peça fundamental para garantir o correto posicionamento da fonte sobre o detector, garantindo a reprodutibilidade de posição da amostra no sistema. Os suportes disponíveis no LNMRI foram fabricados em PVC, figura 4.3, em cinco tamanhos diferentes: $P_0 = 0$ cm; $P_1 = 5$ cm; $P_2 = 10$ cm; $P_3 = 15$ cm e $P_4 = 20$ cm. Onde o comprimento representa a distância entre a fonte e o detector.



Figura 4.3 – Suportes de PVC: $P_2 = 10$ cm e $P_4 = 20$ cm. (ARAÚJO, 2015)

A medição da radiação de fundo foi feita usando um suporte de PVC vazio, sem fonte, posicionado sobre o detector de HPGe. As medições da radiação de fundo ocorreram em períodos longos de tempo. Na análise do espectro de cada fonte é feita a subtração da radiação de fundo utilizando o software MAESTRO® antes de iniciar qualquer coleta de informações.

Para a composição da curva de eficiência de d3 rotina foram utilizados padrões líquidos na geometria de ampola. Os padrões utilizados para a confecção da curva foram: ^{243}Am ; ^{133}Ba ; ^{207}Bi ; ^{57}Co ; ^{60}Co ; ^{134}Cs ; ^{152}Eu ; $^{166}\text{Ho}^m$ e ^{65}Zn . A medição de cada radionuclídeo durou em torno de 24 h na posição p4 = 20 cm.

Os sistemas de espectrometria gama, em específico os sistemas de *High Purity Germanium* (HPGe), têm sido utilizados em muitos trabalhos publicados para obtenção de espectros dos mais variados radionuclídeos emissores X e γ . (DELGADO,2000; BERNARDES, 2001; ARAUJO, 2016) Por possuir uma alta resolução em energia, nos permite observar picos energéticos com grande clareza além de permitir trabalhar com uma extensa faixa energética do espectro. (ARAÚJO, 2015)

4.2.3 Arranjo Experimental para medição do ^{57}Co

Para a medição do ^{57}Co pelos métodos da curva de eficiência, padrão-amostra, pico-soma e também para determinação de suas probabilidades de emissão gama foi usado o mesmo arranjo experimental, que será descrito a seguir. Esse arranjo é conhecido no LNMRI como sistema "d4".

O sistema d4 é constituído dos seguintes componentes eletroeletrônicos:

- Detector de HPGe planar Canberra modelo:GL 2020R
- Pré-amplificador Canberra
- Amplificador Canberra modelo: 241
- Analisador multicanal Ethernin modelo 919E
- Fonte de alta tensão ORTEC® modelo 459
- Sistema de aquisição de dados MAESTRO® II fabricado pela ORTEC®

No sistema d4 o detector está posicionado no centro da plataforma cúbica de volume interno de aproximadamente 1 m^3 . Esta célula é constituída por chumbo com 10 cm de espessura de parede e é revestida internamente com camadas de cádmio e cobre para reduzir a fluorescência dos raios X do chumbo. O detector usado neste arranjo experimental é um HPGe, tipo planar, próprio para energias que variam de (3 a 300) keV. (OLIVEIRA, 2012; ARAUJO, 2015)

O esquema de diagrama de blocos do sistema d4 pode ser representa do pelo mesmo esquema utilizado no sistema d3 rotina, figura 4.2. A medição da radiação de fundo foi feita seguindo o mesmo procedimento usado no sistema d3 rotina. Os fixadores de geometria em PVC também são os mesmos descritos anteriormente.

Para a composição da curva de eficiência de d4 foram utilizados padrões sólidos na geometria de PVC. Os padrões utilizados para a confecção da curva foram: ^{133}Ba ; ^{57}Co , ^{152}Eu e $^{166}\text{Ho}^m$. A medição de cada radionuclídeo durou em torno de 24 h na posição $p_2 = 10 \text{ cm}$.

4.3 Características das Soluções

4.3.1. Solução do $^{106}\text{Ru/Rh}$

A solução-mãe do LNMRI, ampola 20, tem uma atividade aproximada de 404 kBq.g^{-1} em 27/09/2013 às 12 h, hora local.

A partir dessa solução-mãe foram preparadas duas fontes nas geometrias de ampola e 6 frascos de cintilação, em coquetéis de cintilação *Hisafe* e *Ultima Gold*. A ampola 21 foi usada nas medições do método curva de eficiência. Os fracos de cintilação foram preparados com alíquotas da ampola 22. Os dados da solução-mãe do ^{106}Ru estão na figura 4.4.

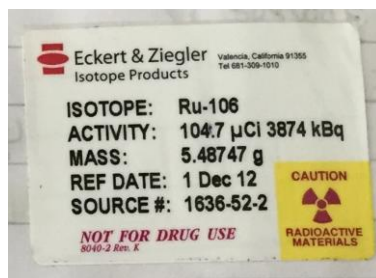


Figura 4.4 - Solução-mãe de ^{106}Ru do LNMRI, ampola 20.

Tabela 4.1 - Fontes de ^{106}Ru .

Tipo	Código	Meio	Massa (g)	Data
Ampola	21	-	2,883862	27/09/2013
Ampola	22	HCl	2,79949	27/09/2013
Frasco de Cintilação	210CL13	15 ml de Hisafe	0,010981	27/09/2013
Frasco de Cintilação	211CL13	15 ml de Hisafe	0,011663	27/09/2013
Frasco de Cintilação	212CL13	15 ml de Hisafe	0,010987	27/09/2013
Frasco de Cintilação	213CL13	15 ml de Ultima Gold	0,010153	27/09/2013
Frasco de Cintilação	214CL13	15 ml de Ultima Gold	0,010762	27/09/2013
Frasco de Cintilação	215CL13	15 ml de Ultima Gold	0,010596	27/09/2013

4.3.2 Solução de ^{57}Co

A solução-mãe do LNMRI, ampola 38, tem uma atividade por unidade de massa aproximada de 7 MBq.g^{-1} em 05/07/2013 às 12 h, hora local.

A solução foi fornecida pela Eckert & Ziegler Isotope Products em um volume de 3 ml com uma atividade de 37 MBq para data de referência de 01/12/2012. Código da fonte 1636-52-1.

A partir dessa solução-mãe foram preparadas fontes nas geometrias de ampola e frasco de cintilação, em coquetéis de cintilação *Hisafe* e *Ultima Gold*. Os dados das

fontes preparadas estão na tabela 4.2. As ampolas 38 e 44 estão fora da geometria de medição.

As ampolas 40 e 44 são diluições da ampola 38, com os seguintes fatores de diluição: ampola 40 - 10,240164 e ampola 44 - 5,705828. Os frascos de cintilação foram preparados a partir da ampola 38.

As fontes em PVC 11 a 14S15 foram preparadas com a ampola 40 e foram as primeiras a serem medidas. Porém por um erro na diluição da ampola, mesmo depois de inúmeras medições, os resultados não eram satisfatórios em nenhum dos três métodos usados. Após a investigação da causa raiz do problema, foram preparadas as fontes 89 a 92S15 com a ampola 44, que foram medidas somente pelo método pico-soma. Os resultados dessas fontes foram compatíveis com o esperado.

Durante a investigação foram encontradas as fontes 01 a 05S14, feitas diretamente da ampola 38, que não receberam um pedido de calibração. Essas fontes tiveram resultados muito satisfatórios. O desconhecimento dessas fontes atrasou o andamento das medições do ^{57}Co .

Tabela 4.2 - Fontes de ^{57}Co .

Tipo	Código	Meio	Massa (g)	Data
Ampola	38	-	4,149610	05/07/2013
Ampola	40	HCl	2,732986	31/01/2014
Ampola	44	HCl	0,992534	27/06/2014
Frasco de Cintilação	01AC14	15 ml de Hisafe	0,013222	31/01/2014
Frasco de Cintilação	02AC14	15 ml de Hisafe	0,012186	31/01/2014
Frasco de Cintilação	03AC14	15 ml de Hisafe	0,013001	31/01/2014
Frasco de Cintilação	04AC14	15 ml de Hisafe	0,012552	31/01/2014
Frasco de Cintilação	05AC14	15 ml de Hisafe	0,013301	31/01/2014
Frasco de Cintilação	06AC14	15 ml de Ultima Gold	0,013283	31/01/2014
Frasco de Cintilação	07AC14	15 ml de Ultima Gold	0,015177	31/01/2014
Frasco de Cintilação	08AC14	15 ml de Ultima Gold	0,014475	31/01/2014
Frasco de Cintilação	09AC14	15 ml de Ultima Gold	0,012037	31/01/2014
Frasco de Cintilação	10AC14	15 ml de Ultima Gold	0,011484	31/01/2014
PVC	11S15	-	0,015178	24/03/2015
PVC	12S15	-	0,022993	24/03/2015
PVC	13S15	-	0,014256	24/03/2015
PVC	14S15	-	0,024746	24/03/2015
PVC	89S15	-	0,018936	13/07/2015
PVC	90S15	-	0,019654	13/07/2015
PVC	91S15	-	0,009155	13/07/2015
PVC	92S15	-	0,011534	13/07/2015
PVC	01S14	-	0,002533	31/01/2014
PVC	02S14	-	0,003796	31/01/2014
PVC	03S14	-	0,005344	31/01/2014
PVC	04S14	-	0,004193	31/01/2014
PVC	05S14	-	0,009266	31/01/2014

4.4 Procedimento Experimental

4.4.1. Medição pelo Método de Contagem em Antico incidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

Anteriormente ao início das medições foram feitos ajustes na eletrônica para determinar alguns parâmetros como: frequência de referência, atraso no canal gama, tempo morto, fixação da janela de contagem no canal gama, que depende do esquema de decaimento de cada radionuclídeo e as tensões de operação do detector *NaI(Tl)* e do detector com cintilador líquido. Neste método a variação da eficiência beta foi feita por discriminação eletrônica.

O *software* utilizado foi desenvolvido em *Labview*. Ele faz a aquisição das contagens de forma semi-automática, onde só é necessário determinar o tempo de medição e o número de medições. Os dados são arquivados com a identificação da fonte no próprio programa ao fim do tempo de contagem.

Os dados extraídos pelo programa são trabalhados em uma planilha de Excel para a determinação da atividade aparente e do parâmetro de eficiência. Esses parâmetros são ajustados no *software Origin*, onde a partir da curva de calibração gerada é possível determinar a atividade por unidade de massa.

Na padronização do ^{106}Rh foi usada a janela gama de 511 keV e a contribuição beta do ^{106}Ru foi eliminada por discriminação eletrônica.

4.4.2. Medição pelos Métodos Curva de Eficiência, Comparação Padrão-amostra, Pico-soma e da Determinação das Probabilidades de Emissão Gama

O procedimento experimental utilizado para a curva de eficiência e comparação padrão-amostra foi o mesmo para os dois sistemas, d3 rotina e d4, e para os dois radionuclídeos estudados, $^{106}\text{Ru/Rh}$ e ^{57}Co . Se diferenciando apenas pela geometria e pela posição em relação ao detector.

Para a medição do $^{106}\text{Ru/Rh}$ foi usada a geometria de ampola na posição $P_4 = 20$ cm no sistema d3 rotina. As principais energias gama usadas neste trabalho foram 511,86 keV, 621,16 keV e 1050,50 keV.

Para a medição do ^{57}Co foi usada a geometria sólida em PVC na posição $P_2 = 10$ cm no sistema d4. Neste trabalho as principais energias gama usadas foram 14,41 keV, 122,06 keV e 136,47 keV. Para o pico-soma foram usadas as energias de raio X de 6,40 keV, gama de 122,06 keV e o soma de 128,46 keV.

As medições do ^{57}Co só iniciaram após o término das medições do $^{106}\text{Ru/Rh}$.

O primeiro passo foi a medição da radiação de fundo (BG) nos sistemas d3 rotina e d4. O que consistiu em colocar os suportes das amostras em PVC, que seriam utilizados, vazios, sem nenhuma fonte radioativa, dentro do detector e iniciar a contagem como se tivesse uma fonte no detector.

Após a contagem do BG, iniciou-se a contagem das fontes padrões e das amostras na posição estabelecida inicialmente. Posteriormente, a contagem do BG foi subtraída de todos os espectros por meio da função *strip* do MAESTRO® e então foi feita a análise dos espectros, obtendo as informações necessárias.

A obtenção da curva de eficiência e das eficiências das energias dos fotopicos foram feitas no LABFIT. Todo o tratamento de dados foi feito em planilhas de Excel, que calculavam as atividades, correções de decaimento e estimava as incertezas de medição.

O método pico-soma foi usado somente na medição do ^{57}Co , com as mesmas fontes de PVC só que na posição $P_0 = 0$ cm, o que aumentou a incidência dos picos-soma. O BG foi medido antes da medição das fontes. Após a eliminação do BG, as informações pertinentes foram obtidas e lançadas na planilha de Excel, que nos forneceu as atividades e suas respectivas incertezas.

A determinação das probabilidade de emissão gama foi a última etapa. Utilizamos os dados obtidos nos espectros anteriores para os métodos padrão-amostra e curva de eficiência. Adotamos como atividade de referência a obtida pelo método de contagem em anticoincidência. Os cálculos de $P\gamma$ e suas incertezas também foram obtidos com o uso do Excel.

4.4.3 Geometria das amostras

As fontes, contendo o radionuclídeo de interesse, foram obtidas mediante a diluição da solução original com água destilada até atingir a atividade por unidade de massa, apropriada para a realização das medições. A seguir, usando o método de pesagem diferencial em uma balança *METTLER TOLEDO* modelo *AX205* no laboratório de preparação de fontes com as condições ambientais entre $19,0\text{ }^{\circ}\text{C}$ e $21,0\text{ }^{\circ}\text{C}$ para temperatura e entre 49% e 51% para umidade relativa do ar.

As fontes foram preparadas nas seguintes geometrias: ampola 2 cm, frascos de cintilação e sólida em PVC, como ilustrado na figura 4.5.



Figura 4.5- Geometrias das amostras.

Os frascos de cintilação foram usados no método de anticoincidência, a ampola com 2 cm de altura de solução foi usada no método curva de eficiência e as fontes sólidas no método pico-soma, curva de eficiência e padrão amostra.

4.4.3.1 Ampola de 2 cm

Uma quantidade da solução radioativa é colocado na ampola, por pesagem diferencial. A atividade por massa da solução deve ser suficiente para realizar as medições. Depois a ampola é completada com água até a altura de 2 cm. Existe um suporte feito para a ampola que torna possível a marcação nessa altura. A massa de solução da ampola fica em média em 2,6 g.

4.4.3.2 Frascos de Cintilação Líquida

Foram usados frascos, de baixo teor de ^{40}K , próprios para uso em cintiladores líquido, contendo cerca de 15 ou 10 mL de solução cintiladora. As soluções cintiladoras usadas foram *Ultima Gold e HiSafe*. Nesses frascos foram colocadas algumas gotas da solução, também o suficiente para obter a atividade desejada.

4.4.3.3 Fonte Sólida em PVC

As fontes foram preparadas depositando gotas de solução do radionuclídeo em um filme de poliestireno, com espessura de 0,05 mm, fixado em um anel de PVC. O anel possui diâmetro externo de 25 mm, diâmetro interno de 4 mm e 1 mm de espessura. Depois de secas, as fontes foram cobertas com o mesmo filme de poliestireno. A Figura 4.6 ilustra o esquema de montagem das fontes (OLIVEIRA, 2012)

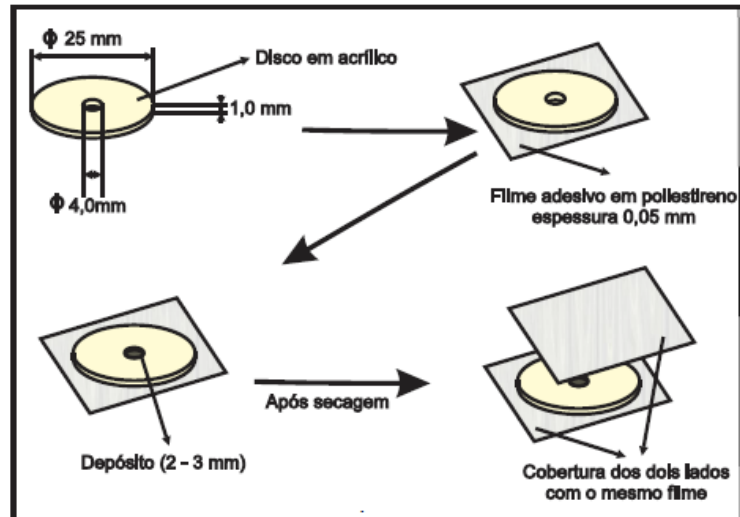


Figura 4.6 - Esquema explicativo do processo de confecção de fontes puntiformes

(OLIVEIRA, 2012)

4.4.4 Componentes das Incertezas de Medição

As componentes da incerteza para os métodos de contagem utilizados neste trabalho estão resumidas no quadro 4.1. Todos os cálculos das incertezas de medição foram realizados em uma planilha do Excel.

Quadro 4.1 – Componentes da incerteza.

Componentes da incerteza		Antico incidência	Curva de eficiência	Pico-soma	Padrão-amostra	Probabilidade de emissão gama ($P\gamma$)
Tipo A	Contagem estatística	x	x	x	x	x
	Ajuste da curva	x				x
Tipo B	Tempo vivo	x		x		
	Massa da amostra	x		x		x
	Meia-vida	x	x	x	x	
	Radiação de fundo (BG)	x				
	Probabilidade de emissão γ		x			
	Energia		x			
	Certificado da fonte padrão		x		x	x
	Eficiência					x

Capítulo 5

RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 Padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$

A determinação da atividade por unidade de massa da solução de $^{106}\text{Ru/Rh}$ foi feita por meio da medição das seis amostras. A tabela 5.1 mostra os resultados obtidos durante os experimentos.

Tabela 5.1 – Valores das atividades por unidade de massa do $^{106}\text{Ru/Rh}$ obtidos pelo método de contagem em anticoincidência.

Amostra	Massa (g)	Meio e volume	Atividade (Bq g⁻¹)
210	0,010981	Hisafe 15 ml	404852,04
211	0,011663	Hisafe 15 ml	402075,29
212	0,010987	Hisafe 15 ml	403856,25
213	0,010153	Ultima Gold 15 ml	406167,63
214	0,010762	Ultima Gold 15 ml	405409,76
215	0,010596	Ultima Gold 15 ml	403903,32
Média			404337,38
Data de Referência: 27/09/2013		Hora de referência: 12 h	

A tabela 5.2 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ utilizando o método de anticoincidência .

Tabela 5.2 – Componentes de incerteza na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelo método de anticoincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,18	
Ajuste	0,36	
Tempo Vivo		0,01
Massa da amostra		0,05
Meia-vida		0,26
Radiação de fundo		0,14
Incerteza combinada		0,50 %
Incerteza expandida	k = 2,00 95,45%	1,0%

A figura 5.1 ilustra a curva de extrapolação usada pelo método de anticoincidência para o $^{106}\text{Ru/Rh}$.

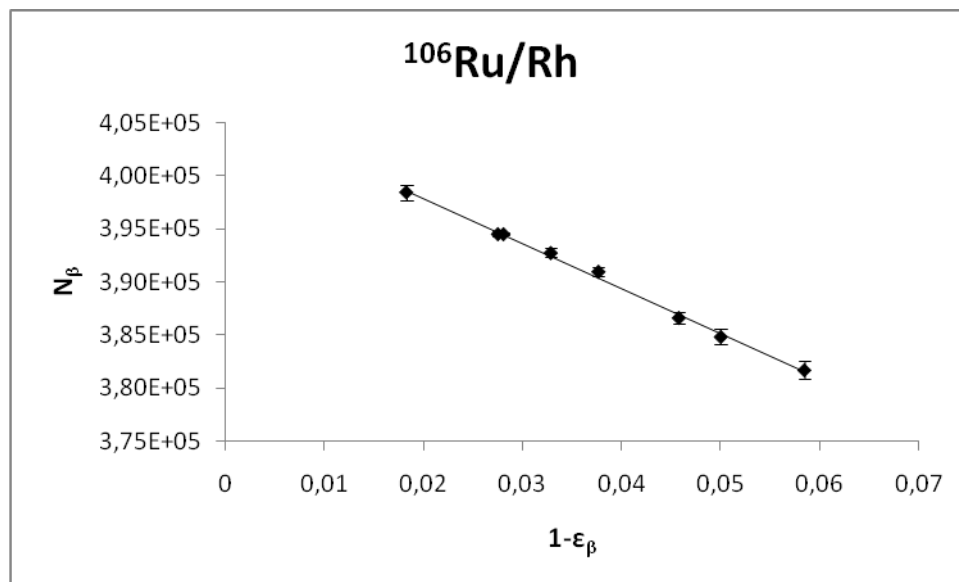


Figura 5.1 - Curva de extrapolação usada pelo método de anticoincidência para o $^{106}\text{Ru/Rh}$.

A tabela 5.3 apresenta um comparativo entre a atividade por massa encontrada pelo método de anticoincidência e o resultado do método curva de eficiência. Ambos para a data de referência de 23/03/2015. Os resultados dos dois métodos são bem consistentes. A incerteza do método absoluto é bem menor que a obtida pelo método relativo, como já esperado.

Não foram encontradas evidências de impurezas nas amostras.

Tabela 5.3 – Valores da atividade por unidade de massa do $^{106}\text{Ru/Rh}$ obtidos pelos métodos de contagem em anticoincidência e curva de eficiência.

Método	Atividade (kBq/g)	Incerteza (%) k=1
Anticoincidência	147,464	0,5
Curva de eficiência	145,404	1,1

Data de referência: 23/03/2015 Hora de referência: 12 h

A tabela 5.4 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ utilizando o método curva de eficiência.

Tabela 5.4 – Componentes de incerteza na padronização do $^{106}\text{Ru/Rh}$ pelo método curva de eficiência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,3	
Meia-vida		0,5
P_{γ}		0,6
Energia		0,4
Certificado		0,5
Incerteza combinada		1,1%
Incerteza expandida	k = 2,00 95,45%	2,2%

A figura 5.2 ilustra a curva de eficiência elaborada neste trabalho no sistema d3 rotina, na posição P₄, geometria ampola, pelo LABFIT. Na curva o eixo y corresponde a eficiência e o eixo x a energia.

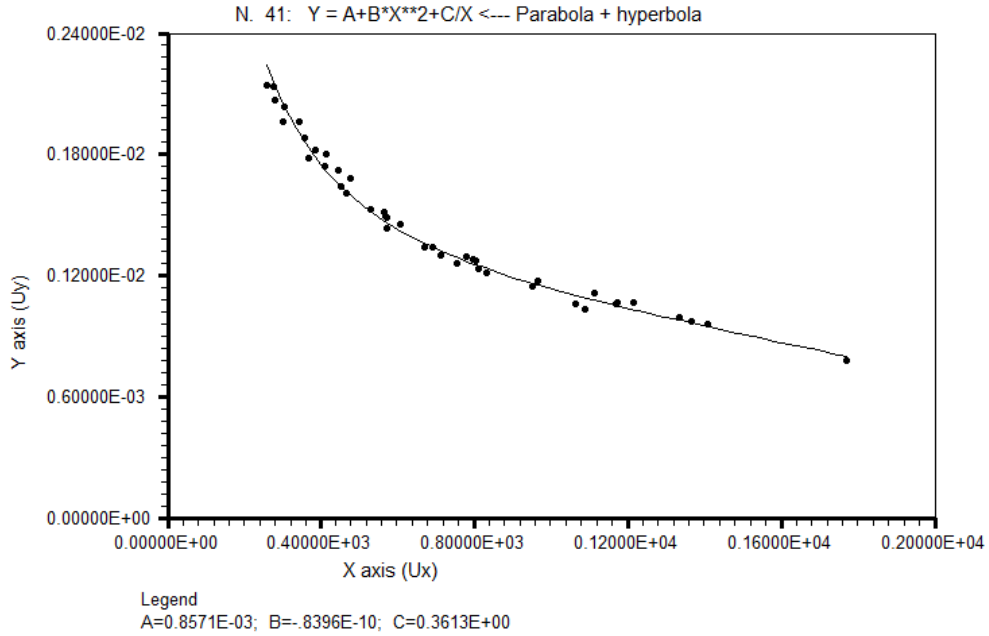


Figura 5.2 - Curva de eficiência do sistema d3 rotina na posição P₄.

5.2 Probabilidade de Emissão Gama do ¹⁰⁶Ru/Rh

A tabela 5.5 apresenta os resultados obtidos para as probabilidades de emissão gama do ¹⁰⁶Ru/Rh e suas incertezas relativas. Como também traz um comparativo com os valores de P_γ encontrados na tabela LARA do LNHB. As três energias destacadas correspondem as energias mais prováveis.

Os valores obtidos neste trabalho são bem coerentes com os disponíveis na literatura. E também podemos observar que este trabalho conseguiu resultados com menores incertezas.

Tabela 5.5 – Probabilidades de emissão gama do $^{106}\text{Ru/Rh}$

Energia (keV)	Tabela LARA			Este trabalho		
	P γ	u P γ	u P γ %	P γ	u P γ	u P γ %
428,2	0,071	0,003	4,2	0,062	0,001	2,2
511,86	20,500	0,50	2,4	20,595	0,30	1,4
616,2	0,740	0,03	4,0	0,730	0,011	1,4
621,8	9,950	0,18	1,8	9,873	0,14	1,4
873,5	0,430	0,02	4,6	0,418	0,007	1,5
1050,4	1,470	0,04	2,7	1,414	0,021	1,4
1062,15	0,030	0,003	10	0,027	0,001	2,9
1128,1	0,380	0,01	2,6	0,365	0,005	1,4
1180,7	0,014	0,001	7,1	0,012	0,001	5,7
1194,6	0,054	0,003	5,5	0,053	0,001	2,8
1562,22	0,150	0,01	6,6	0,151	0,003	2,1
1766,25	0,029	0,005	17	0,039	0,002	4,0
1796,8	0,025	0,002	8,0	0,023	0,001	5,7

5.3 Padronização do ^{57}Co

A determinação da atividade por unidade de massa da solução de ^{57}Co foi feita por meio da medição das amostras. A tabela 5.6 mostra os resultados obtidos durante os experimentos. Os frascos 03, 05 e 09AC14 não tiveram resultados compatíveis, foram considerados outliers e descartados.

Tabela 5.6 – Valores da atividade por unidade de massa do ^{57}Co obtidos pelo método de contagem em anticoincidência.

Amostra	Massa (g)	Meio e volume	Atividade (MBq g⁻¹)
01AC14	0,013222	Hisafe 15 ml	8,76
02AC14	0,012186	Hisafe 15 ml	8,70
04AC14	0,012552	Hisafe 15 ml	8,79
06AC14	0,013283	Ultima Gold 15 ml	8,73
07AC14	0,015177	Ultima Gold 15 ml	8,77
08AC14	0,014475	Ultima Gold 15 ml	8,70
10AC14	0,011484	Ultima Gold 15 ml	8,63
Média			8,73
Data de Referência: 31/01/2014		Hora de referência: 12 h	

A tabela 5.7 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do ^{57}Co utilizando o método de anticoincidência.

Tabela 5.7 – Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método de anticoincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,64	
Ajuste	0,19	
Tempo Vivo		0,01
Massa da amostra		0,05
Meia-vida		0,02
Radiação de fundo		0,01
Incerteza combinada		0,64%
Incerteza expandida	k = 2,00	95,45%
		1,3%

A figura 5.3 ilustra a curva de extrapolação usada pelo método de anticoincidência para o ^{57}Co .

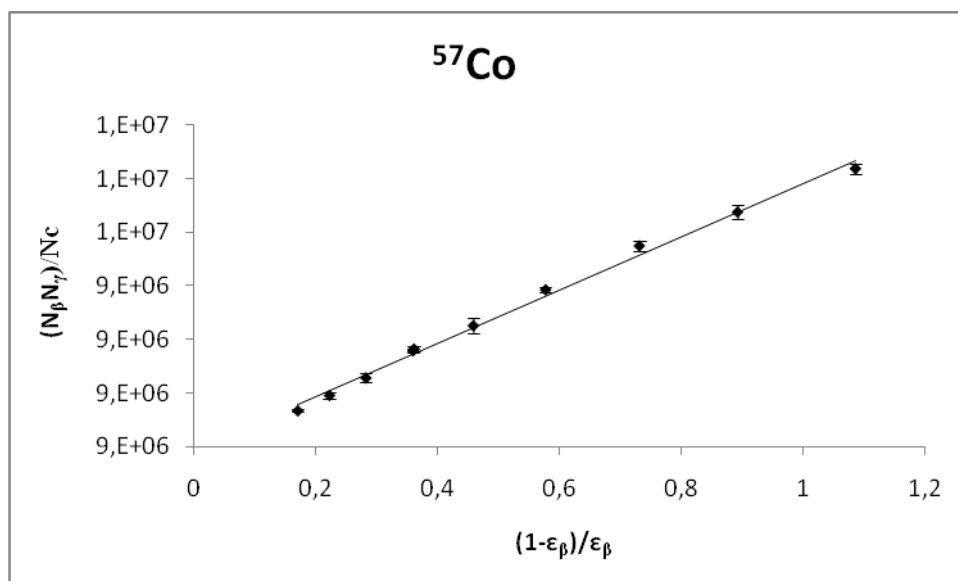


Figura 5.3 - Curva de extrapolação usada pelo método de anticoincidência para o ^{57}Co .

A tabela 5.8 apresenta os valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 11 a 14S15. Os resultados dessas quatro fontes não foram considerados, por apresentarem uma grande discrepância em relação aos outros resultados, devido ao erro de diluição comentado no item 4.3.2.

A tabela 5.9 mostra os resultados das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelo método pico-soma para as fontes de 89 a 92S15. Embora os resultados tenham sido compatíveis com os resultados esperados, eles não foram considerados no resultado final. Essas fontes e medições foram realizadas para confirmação da solução usada, se realmente foi a ampola 44.

Tabela 5.8 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 11 a 14S15.

Método	11S15		12S15		13S15		14S15	
	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)
Pico-soma	1230,02	0,7	1203,91	0,5	1241,79	0,4	1223,24	0,4
Curva de Eficiência	1781,89	0,4	1766,78	0,4	1798,34	0,6	1801,91	0,5
Padrão-amostra	1868,01	0,9	1841,31	0,9	1887,25	0,9	1891,44	0,9

Data de referência: 18/6/2015 Horário de referência: 12 h k=2,0

Tabela 5.9 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelo método pico-soma para as fontes de 89 a 92S15.

Método	89S15		90S15		91S15		92S15	
	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)
Pico-soma	2342,06	0,4	2416,10	0,2	2418,57	0,8	2402,05	0,6

Data de referência: 18/6/2015 Horário de referência: 12 h k=2,0

A tabela 5.10 apresenta os resultados das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 01 a 05S14. Os resultados são consistentes, apresentam baixas incertezas e são os que foram considerados no resultado final.

Tabela 5.10 – Valores das atividades por unidade de massa do ^{57}Co e suas incertezas, obtidos pelos métodos pico-soma, curva de eficiência e padrão-amostra para as fontes de 01 a 05S14.

Método	01S14		02S14		03S14		04S14		05S14	
	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)	Atividade (kBq/g)	U (%)
Pico-soma	2432,00	0,04	2443,35	0,21	2420,52	0,26	2427,83	0,25	2399,07	0,05
Curva de Eficiência	2403,56	1,1	2360,90	1,0	2895,17	0,9	2326,90	0,9	2965,91	0,9
Padrão-amostra	2653,25	1,2	2617,70	1,1	2543,02	1,1	2574,41	1,1	2606,19	1,0

Data de referência: 18/6/2015 Horário de referência: 12 h k=2,0

A tabela 5.11 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do ^{57}Co utilizando o método curva de eficiência.

Tabela 5.11 – Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método curva de eficiência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,2	
Meia-vida		0,05
P_{γ}		0,1
Energia		0,1
Certificado		0,5
Incerteza combinada		0,5%
Incerteza expandida	k = 2,00	95,45%
		1,1%

A tabela 5.12 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do ^{57}Co utilizando o método padrão-amostra.

Tabela 5.12 – Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método padrão-amostra.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,5	
Meia-vida		0,05
Certificado		0,4
Incerteza combinada		0,6%
Incerteza expandida	k = 2,00 95,45%	1,2%

A tabela 5.13 mostra os componentes de incerteza obtidos na padronização do ^{57}Co utilizando o método pico-soma.

Tabela 5.13 – Componentes de incerteza na padronização do ^{57}Co pelo método pico-soma.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,03	
Tempo vivo		0,1
Massa		0,10
Meia-vida		0,05
Incerteza combinada		0,15%
Incerteza expandida	k = 2,00 95,45%	0,3 %

A figura 5.4 ilustra a curva de eficiência elaborada neste trabalho no sistema d4, na posição P₂, geometria sólida em PVC, pelo LABFIT. Nesta curva o eixo y corresponde a eficiência e o eixo x corresponde a energia.

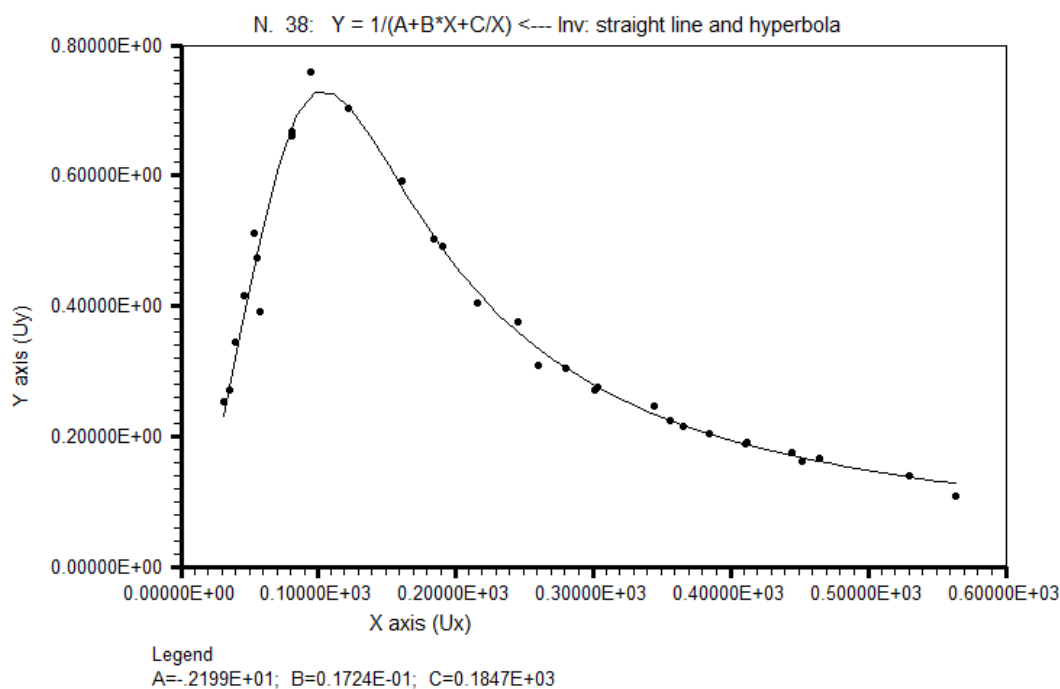


Figura 5.4 - Curva de eficiência do sistema d4 na posição P₂.

A tabela 5.14 apresenta um comparativo entre as atividade por massa encontradas pelos quatro métodos. Todos para a data de referência de 18/06/2015.

Os resultados dos métodos absolutos apresentam uma diferença de apenas 0,2% entre eles. Sendo a incerteza do método pico-soma a menor obtida. Os resultados dos métodos relativos diferiram cerca de 7% dos métodos absolutos. Embora seja uma diferença significativa, não encontramos a causa desse desvio.

Foram realizados vários testes, como por exemplo: usar a fonte calibrada pelo pico-soma como o padrão no método padrão-amostra e elaborar outra curva de eficiência apenas com padrões do BIPM. Mesmo assim os resultados continuaram com um desvio de cerca de 7% dos métodos absolutos. Uma possível causa é a ausência de padrões com baixas energias para elaboração da curva de eficiência.

Não foram encontradas evidências de impurezas nas amostras.

Tabela 5.14 – Valores da atividade por unidade de massa do ^{57}Co obtidos pelos métodos de contagem em anticoincidência, curva de eficiência, padrão-amostra e pico-soma.

Método	Atividade (kBq/g)	Incerteza (%) k=2
Anticoincidência	2420,59	1,3
Pico-soma	2424,55	0,3
Curva de Eficiência	2590,49	1,1
Padrão-amostra	2598,92	1,2

Data de referência: 18/6/2015 Horário de referência: 12 h

5.4 Probabilidade de Emissão Gama do ^{57}Co

A tabela 5.15 apresenta os resultados obtidos para as probabilidades de emissão gama do ^{57}Co e suas incertezas relativas. Como também traz um comparativo com os valores de P_γ encontrados na tabela LARA do LNHB. As três energias apresentadas correspondem as energias mais prováveis.

Os valores obtidos neste trabalho quando comparados com os disponíveis na literatura apresentam um certo desvio, principalmente para a energia de 14 keV, que provavelmente foi causado pela extrapolação da curva de eficiência.

Tabela 5.15 – Probabilidades de emissão gama do ^{57}Co

Energia (keV)	Tabela LARA			Este trabalho		
	P_γ	u P_γ	u P_γ %	P_γ	u P_γ	u P_γ %
14,41	9,15	0,17	1,9	14,41	0,32	2,2
122,06	85,51	0,06	0,1	81,51	0,99	1,2
136,47	10,71	0,15	1,4	10,33	0,14	1,3

5.5 Medição do ^{166m}Ho

A tabela 5.16 apresenta os resultados obtidos antes e depois das modificações feitas no sistema utilizado pelo método de contagem em anticoincidência. Ambos os resultados estão expressos para a data de referência de 28/03/2015. Os valores obtidos para a atividade por massa foram bem próximos e podemos observar a redução da incerteza de medição após as modificações aplicadas ao sistema. O resultado considerado como valor anterior as modificações foi o obtido em 2009 por DA SILVA. (DA SILVA, 2012).

Tabela 5.16 – Medição do ^{166m}Ho .

^{166m}Ho - Método de Contagem em Anticoincidência		
Data da medição	Atividade (kBq/g)	Incerteza (%) k=2
28/03/2009	480,46	0,48
29/04/2015	480,77	0,31

Data de Referência: 28/03/2009 Horário de referência: 12 h

A figura 5.5 ilustra a curva de extrapolação usada pelo método de anticoincidência para o ^{166m}Ho .

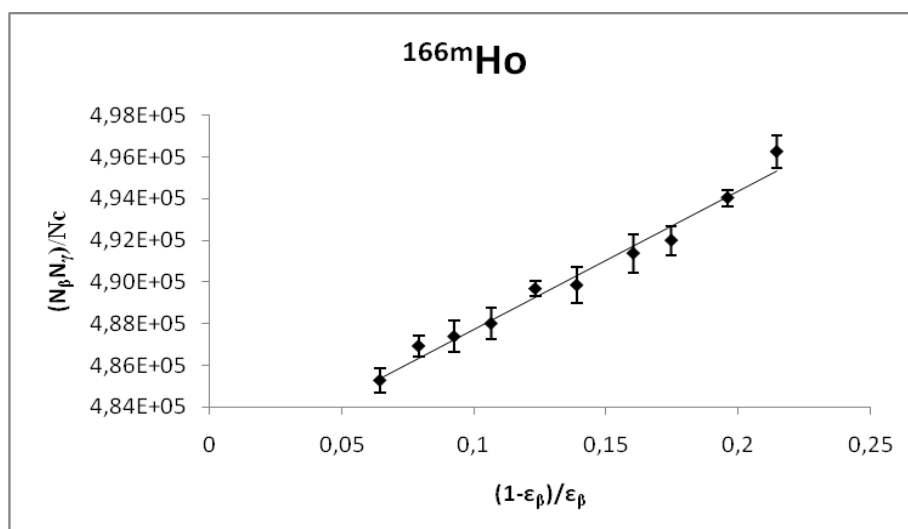


Figura 5.5 - Curva de extrapolação do método de anticoincidência para o ^{166m}Ho .

Capítulo 6

CONCLUSÃO

Os objetivos iniciais do trabalho foram alcançados. As mudanças no sistema foram realizadas e os dois radionuclídeos propostos foram calibrados.

Os resultados obtidos com o método de contagem em anticoincidência foram validados e são bastante satisfatórios, além de apresentarem incertezas baixas e compatíveis, para os radionuclídeos padronizados.

Na determinação das probabilidades de emissão gama os resultados foram encontrados próximos aos da literatura e com baixas incertezas, principalmente para o $^{106}\text{Ru/Rh}$.

Em relação as modificações aplicadas no sistema, podemos classificá-las como satisfatórias, uma vez que houve uma redução das incertezas de medição. O maior impacto foi na incerteza da estatística de contagem, devido as melhores condições de medição em relação as novas fotomultiplicadoras.

Todos os resultados obtidos para $^{106}\text{Ru/Rh}$ foram bem animadores, uma vez que este radionuclídeo ainda não havia sido padronizado no LNMRI. Essa padronização permitirá seu uso para a confirmação da rastreabilidade metrológica e para melhorar a garantia da sua correta administração nos serviços de medicina nuclear do país (SMN).

A padronização do ^{57}Co também foi bem relevante, porque permitiu a determinação de novos valores de referência para seu uso nos SMN e para rastreabilidade metrológica.

Nas calibrações, os resultados obtidos foram bem satisfatórios. Para os dois radionuclídeos a incerteza expandida ficou próxima de 1%, com $k=2$ para um nível de confiança de 95,45%. Sendo suficientes para assegurar uma incerteza menor que 5%,

conforme recomendações internacionais da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) (IAEA, 2006), e também ao limite de 10% da norma nacional CNEN-NN-3.05 (CNEN, 2013), para a calibração dos calibradores de radionuclídeos utilizados nas radiofarmácias e serviços de medicina nuclear do país.

Como sugestão para trabalhos futuros, os resultados obtidos neste trabalho para o $^{106}\text{Ru/Rh}$ devem ser comparados a um método absoluto. Outra sugestão é a organização de uma comparação assim que o sistema de contagem em coincidência estiver disponível para uso no LNMRI. Além disso o LNMRI deve enviar uma amostra da solução do $^{106}\text{Ru/Rh}$ ao BIPM para garantir a rastreabilidade das medições. E também participar de uma comparação-chave do $^{106}\text{Ru/Rh}$.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALMEIDA, M. C. M. IWAHARA, A. POLEDNA, R. DA SILVA, C. J. DELGADO, J. U. **Absolute desintegration rate and 320 keV γ -ray emission probability of ^{51}Cr .** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 580. 165-168. 2007.

ARAÚJO, M. T. F. **Padronização Absoluta do Te-121 por espectrometria gama utilizando o método pico-soma.** Dissertação de Mestrado. IRD/CNEN. 2015.

ARAÚJO, M.T.F. POLEDNA, R. DELGADO, J.U. SILVA, R.L. IWAHARA, A. DA SILVA, C.J. TAUHATA, L. OLIVEIRA, A.E. ALMEIDA, M.C.M. LOPES, R.T. **Absolute standardization of the impurity ^{121}Te associated to the production of the radiopharmaceutical ^{123}I .** Applied Radiation and Isotopes 109. 389-392. 2016.

BAERG, A.P. **The Efficiency Extrapolation Method in Coincidence Counting.** Nuclear Inst. and Method 112. 146. 1973.

BAERG, A.P. MUNZENMAYER, K. BOWES, G.C. **Live-timed Anticoincidence Counting with Extending Dead-time Circuitry.** Metrologia 12. 77-80. 1976.

BACCARELLI, Aida Maria. **Sistema primário por coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ para a padronização de radionuclídeos empregando cintiladores plásticos.** Tese de Doutorado. 2003. IPEN.

BERNARDES, E. M. O. **$\text{Ho}166\text{m}$: Padrão Multi-gama para a Determinação de Atividade de Radionuclídeos por Meio de Detectores Semicondutores.** Dissertação de Mestrado. 2001. PUC - Rio de Janeiro.

BOUCHARD, J. **MTR2: a discriminator and dead-time module used in counting systems.** Applied Radiation and Isotopes 52. 441–446. 2000.

BRINKMAN, G. A. ATEN, A. H. W. **Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal-III – Calibration of β^+ -Emitters.** Applied Radiation and Isotopes 14. 503-510. 1963.

BRINKMAN, G. A. ATEN, A. H. W. VEENBOER, Jr. **Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal-I - Calibration by Means of a Single Nuclide.** International Applied Radiation and Isotopes 14. 153-157. 1963.

BRYANT. J. **Anticoincidence Counting Method for Standardizing Radioactive Materials.** Applied Radiation and Isotopes 13, 273-276. 1962.

BRYANT. J. **Advantage of Anticoincidence counting for Standardization of radionuclides Emitting Delayed Gamma.** IEAA Symp. Standardization of Radionuclides. SM-79/21. 1967.

CAMPION, P.J. **The standardization of radioisotopes by beta–gamma coincidence method using high efficiency detectors.** Applied Radiation and Isotopes 4, 232–235. 1959.

DA SILVA, C.J. IWAHARA, A. POLEDNA, R. BERNARDES, E.M.O. PRINZIO, M.A.R.R. LOPES, R.T. **“Standardization of ^{241}Am , ^{124}Sb and ^{131}I by live-time Anti-coincidence Counting with Extended Dead Time.”** Applied Radiation and Isotopes 66, 886-889. 2008.

DA SILVA, C.J. IWAHARA, A. POLEDNA, R. BERNARDES, E.M.O. PRINZIO, M.A.R.R. LOPES, R.T. **“Standardization of ^{67}Ga , ^{51}Cr and ^{55}Fe by live-time**

Anti-coincidence Counting with Extended Dead Time.” Applied Radiation and Isotopes 66, 231-235. 2008.

DA SILVA, Carlos José. **Implementação de um Sistema de Anticoincidência 4π NaI(Tl)-CL com Cronometragem em Tempo Vivo e Tempo Morto Extendível.** Tese de Doutorado. 2008. COPPE/UFRJ.

DA SILVA, C.J. LOUREIRO, J.S. DELGADO, J.U. IWAHARA, A. POLEDNA, R. MOREIRA, D.D. TAUHATA, L. DA SILVA, R.L. LOPES, R.T. **“Standardization of ^{166m}Ho and $^{243}\text{Am}/^{239}\text{Np}$ by live-timed Anti-coincidence Counting with Extended Dead Time.”** Applied Radiation and Isotopes 70, 2056-2059. 2012.

DA SILVA, C.J. REZENDE, E.A. CORREIA, A.R. IWAHARA, A. TAUHATA, L. POLEDNA, R. DA SILVA, R.L. OLIVEIRA, E.M. OLIVEIRA, A.E. **Radioactivity measurements of ^{177}Lu , ^{111}In and ^{123}I by different absolute methods.** Applied Radiation and Isotopes 70. 2081-1086. 2012.

DA SILVA, C.J. IWAHARA, A. MOREIRA, D.S. DELGADO, J.U. GOMES, R.S. **^{57}Co half-life determination.** Applied Radiation and Isotopes 70. 1924-1926. 2012.

DELGADO, J.U. **Probabilidade de emissão X e gama determinadas por espectrometria em regiões complexas.** Tese de Doutorado. COPPE/UFRJ. 2000.

FITZGERALD, R. **Monte Carlo based approach to the LS–NaI 4πβ–γ anticoincidence extrapolation and uncertainty.** Applied Radiation and Isotopes. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.11.107i>. 2015.

GARFINKEL, S.B. HUTCHINSON, J.M.R **The standardization of Cobalt-57.**
Applied Radiation and Isotopes 17. 587-593. 1966.

HAVELKA, Miroslav. SOCHOROVÁ, Jana. **Standardization of ^{56}Co and ^{57}Co using software coincidence counting system.** Applied Radiation and Isotopes 66. 914-918. 2008.

HJORTENBERG, P. HANSEN, J.W. WILLE, M. **Measurement of dose rate from $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ ophthalmic applicators by means of alamine-polymer foils.** Applied Radiation and Isotopes 40. 997-1001. 1989.

IWAHARA, Akira. **Técnica de traçador para medida de atividade específica de ^{63}Ni , utilizando um sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$.** Dissertação de Mestrado. 1979. Instituto Militar de Engenharia (IME)-RJ.

IWAHARA, A. DA SILVA, C.J. REZENDE, E.A. TAUHATA, L. **Padronização primária de uma solução de ^{177}Lu .** 2009. 5º Congresso Brasileiro de Metrologia. Salvador, Bahia.

IWAHARA, A. POLEDNA, R. DA SILVA, C.J. TAUHATA, L. **Primary activity standardization of ^{57}Co by sum-peak method.** Applied Radiation and Isotopes 67. 1987-1991. 2009.

KAWADA, Y. KIMURA, M. **Effects of source - absorber spacing in the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence counting of ^{106}Ru - ^{106}Rh .** Applied Radiation and Isotopes 22. 251-253. 1971.

KORUN, M. MAVER MODEC, P. **Measurements of ^{106}Ru activity in thin samples.** Applied Radiation and Isotopes 68. 1392-1396. 2010.

KOSKINAS, M.F. MOREIRA, D.S. YAMAZAKI, I.M. TOLEDO, F. BRANCACCIO, F. DIAS, M. **Primary standardization of ^{57}Co .** Applied Radiation and Isotopes 68. 1344-1348. 2010.

KOVACEVIC, Nedad. VRTAR, Mladen. VEKIC, Branko. **A simple calibration method for ^{106}Ru - ^{106}Rh eye applicators.** Radiotherapy and Oncology 74. 293-299. 2005.

LIMA, Clarindo A. **Avaliação da performance dos detectores iodeto de sódio NaI(Tl) em centrais nucleares.** Dissertação de Mestrado. 2006. COPPE/UFRJ.

LOUREIRO, Jamir dos Santos. **Calibração de radionuclídeos que decaem por emissão beta ou por captura eletrônica pela técnica de cintilação líquida.** Tese de Mestrado. 2000. IME-RJ.

MARCONI, D.G. et al. **Tumor control, eye preservation, and visual outcomes of ruthenium plaque brachytherapy for choroidal melanoma.** Brachytherapy 12. 235-239. 2013.

MICHOTE, C. RATEL, G. HINO, Y. COURTE, S. YUNOKI, A. BOBIN, C. MOUNE, M. **Activity measurements of the radionuclide ^{57}Co for the NMIJ, Japan and the LNE-LNHB, France in the ongoing comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57.** BIPM. 2009.

MICHOTE, C. RATEL, G. COURTE, S. FITZGERALD, R. SAHAGIA, M. **Activity measurements of the radionuclide ^{57}Co for the NIST, USA and the IFIN-HH, Romania in the ongoing comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57.** BIPM. 2012.

MIYAHARA, H. MOMOSE, T. WATANABE, T. **Optimisation of Efficiency Extrapolation Functions In Radioactivity Standardization.** Applied Radiation and Isotopes 37.1-5. 1986.

NOVKOVIC, D. KANDIC, A. VULKANAC, I. DURASEVIC, M. MILOSEVIC, Z. **The direct measurement of ^{57}Co activity by the sum-peak method.** Applied Radiation and Isotopes 70. 2154-2156. 2012.

OLIVEIRA, Estela Maria. **Padronização absoluta de radionuclídeos emissores de pósitrons por espectrometria gama com o método pico-soma.** Tese de Doutorado. 2012. COPPE/UFRJ.

PRASAD, M.V.R SURYANARAYANA, D.S. JEEVANRAM, R.K. **A simple non-distillation method for the estimation of Ru-106 in urine.** Applied Radiation and Isotopes 45. 33-40. 1994.

RATEL, G. MICHOTE, C. HINO, Y. KOSSET, K. JANBEN, H. **Activity measurements of the radionuclide ^{57}Co for the NMIJ, Japan and the PTB, Germany in the ongoing comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-57.** BIPM. 2005.

REZENDE, E.A. JUNIOR, S.H. TAUHATA, L. **Estudo Metrológico da Atividade dos Radionuclídeos.** Trabalho de conclusão de curso. IFRJ/Nilópolis. 2009.

REZENDE, Eduarda Alexandre. **Padronização Absoluta do ^{177}Lu e do ^{111}In .** Dissertação de Mestrado. 2011. IRD/CNEN.

SANTRY. D.C. BOWES, G.C. MUNZENMAYER, K. **“Standardization of ^{67}Ga by Live Timed Anti-coincidence Counting with Extended Dead Time”.** Applied Radiation and Isotopes 38. 787-791. 1987.

SCHÖNFELD, E. DERSCH, R. ^{166m}Ho , **BNM - Table de Radionucléides**. Commissariat à l'Énergie Atomique. 1999.

SOCHOROVÁ, J. AVERBACH, P. HAVELKA, M. **Application of “wet” extrapolation method for activity standardization of electron capture radionuclides**. Applied Radiation and Isotopes 66. 919-924. 2008.

TAUHATA, Luiz. **Apostila de Metrologia de Radionucléidos**. 4^o revisão. Instituto de Radioproteção e Dosimetria. Rio de Janeiro. 2014.

TAUHATA, L., VIANNA, M.E. et al. **The Brazilian National Intercomparison Program (PNI/IRD/CNEN): evaluation of 15 years of data**. Journal of Environmental Radioactivity 86, 384-390. 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 66, 981-987. 2008.

TROUGHTON, M.E.C. **The absolute standardization of Cobalt-57**. Applied Radiation and Isotopes 17. 145-150. 1966.

VIANNA, M.E.C.M. TAUHATA, L. OLIVEIRA, A.G. OLIVEIRA, J.P. CLAIN, A.F. FERREIRA, A.C.M **Evaluation of Brazilian intercomparison program data from 1991 to 1995 of radionuclide assays in environmental samples**. Applied Radiation and Isotopes 49. 1463-1466. 1998.

VIM. **Vocabulário Internacional de Metrologia: Conceitos fundamentais e gerais e termos associados.** Duque de Caxias. Rio de Janeiro. INMETRO. 2012.

WILLEY, N.J. FAWCETT, K. **Inter-taxa differences in root uptake of $^{103/106}\text{Ru}$ by plants.** Journal of Environmental Radioactivity 86. 227-240. 2006.

WOODS, M. J. KEIGHTLEY, J.D. CIOCANEL, M. PATON WALSH, C. **NPL Secondary Standard Radionuclide Calibrator: New Calibration figures for ^{106}Ru , ^{153}Sm e ^{188}Re .** Applied Radiation and Isotopes 49. 1191-1193. 1998.

ZIMMERMAN, B.E. PALM, S. **Results of an international comparison of ^{57}Co .** Applied Radiation and Isotopes 68. 1217-1220. 2010.

_____. **ABNT.** NBR ISO/IEC 17025. Requisitos gerais para a competência de laboratórios de ensaio e calibração. Rio de Janeiro, 2005.

_____. **ANVISA.** RESOLUÇÃO-RDC N°63. Brasil, 2009.

_____. **CNEN.** CNEN-NN-3.05. Requisitos de Segurança e Proteção Radiológica para Serviços de Medicina Nuclear. 2013.

_____. **IAEA.** “Quality Assurance for Radioactivity Measurements in Nuclear Medicine”. Technical Reports Series n° 454. Vienna. 2006.

_____. **INMETRO.** Disponível em: <http://www.inmetro.gov.br/metcientifica/ionizantes.asp>. Acesso em: 21 março 2014.

_____. **IRD.** Disponível em: http://www.ird.gov.br/index.php?option=com_content &view=article&id=19&Itemid=27. Acesso em: 21 março 2014.

_____. **ISO GUM**. Guia para a expressão da incerteza de medição. 3º edição. 2003.

_____. **LNMRI**. Disponível em: <<http://lnmri.ird.gov.br/>>. Acesso em: 21 março 2014.

_____. **LARA** Tabela de Radionuclídeos – ^{106}Ru . Disponível em: <<http://www.laraweb.free.fr>> Acesso em 20/03/2014.

_____. **LARA** Tabela de Radionuclídeos – ^{57}Co . Disponível em: <<http://www.laraweb.free.fr>> Acesso em 20/03/2014.

_____. **LNHB** Tabela de Radionuclídeos – ^{106}Ru . Disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ru-106_tables.pdf> Acesso em 20/03/2014.

_____. **LNHB** Tabela de Radionuclídeos – ^{106}Rh . Disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Ru-106_tables.pdf> Acesso em 20/03/2014.

_____. **LNHB** Tabela de Radionuclídeos – $^{166\text{m}}\text{Ho}$. Disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Co-57_tables.pdf> Acesso em 28/04/2016.

_____. **LNHB** Tabela de Radionuclídeos – ^{57}Co . Disponível em: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Co-57_tables.pdf> Acesso em 20/03/2014.