



DETERMINAÇÃO DE PROBABILIDADES DE EMISSÃO DE RAIOS-X  
CARACTERÍSTICOS E GAMAS COM DETECTOR DE CdTe

Amanda Ribeiro Correia

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

Akira Iwahara

Rio de Janeiro

Junho de 2016

DETERMINAÇÃO DE PROBABILIDADES DE EMISSÃO DE RAIOS-X  
CARACTERÍSTICOS E GAMAS COM DETECTOR DE CdTe

Amanda Ribeiro Correia

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.

---

Dr. Akira Iwahara, D.Sc.

---

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

---

Prof. Edgar Francisco Oliveira de Jesus, D.Sc.

---

Dr. Carlos José da Silva, D. Sc.

---

Dr<sup>a</sup>. Estela Maria de Oliveira Bernardes, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

JUNHO DE 2016

Correia, Amanda Ribeiro

Determinação de probabilidades de emissão de Raios-X característicos e gamas com detector de CdTe. / Amanda Ribeiro Correia. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2016.

XVII, 86 p.: il.; 29,7 cm.

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

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

Referências Bibliográficas: p. 79 - 86.

1. Padronização de radionuclídeos. 2. Probabilidade de emissão de fótons. 3. Telureto de Cádmiio. I. Lopes, Ricardo Tadeu *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

*À minha filha, Valentina*

*Ao meu marido, Artur*

*Aos meus pais, Armando e Cicleia*

*À minha irmã, Monique*

## **AGRADECIMENTOS**

Agradeço a Deus, antes de qualquer coisa. Por Ele ter me dado força e paciência nessa jornada múltipla que foi o Doutorado. Muitos foram os momentos de desespero, com filha pequena, tendo que fazer tudo ao mesmo tempo e Ele não me desamparou.

Esta tese não chegaria ao fim sem a ajuda de duas pessoas que são fundamentais para mim: meu marido Artur e minha filha Valentina. Agradeço todos os dias por vocês existirem. Artur foi meu braço direito e foi o esquerdo também, ajudou com tudo o que lhe foi possível durante todos esses anos de doutoramento. Obrigada, só, não seria suficiente. Valentina chegou já na metade do doutorado, foi um verdadeiro furacão nas nossas vidas. Mudou completamente o meu jeito de viver e de ser. Mas, hoje não sei como pude existir todo esse tempo sem ela. Cada abraço, cada beijo me deu forças para continuar e chegar até aqui. Mesmo sem entender nada, me ajudou tanto...

Cicleia e Armando, meus pais. Aqueles que me deram a vida, que estavam lá nos meus primeiros passinhos, no primeiro dia da escola e no último também. Aqueles que sempre me ensinaram os reais valores da vida, que foram meus primeiros professores e sem dúvida, sem eles, eu também não chegaria até aqui. Vocês são e vão ser para sempre meus pilares, meu porto seguro, as pessoas que sempre me acolherão. Minha irmã, Monique. Obrigada por me apoiar, por se orgulhar de mim, por tudo.

Agradeço ao meu orientador Ricardo Tadeu Lopes, por sua generosidade e por toda a ajuda durante todos esses anos.

Não poderia deixar de agradecer ao meu orientador externo, Akira Iwahara, por ter sido esta pessoa tão maravilhosa, desde o mestrado. Obrigada por toda a ajuda, todo o ensinamento, todo o companheirismo e principalmente por toda a paciência comigo e com meu trabalho. Obrigada por ter acreditado em mim.

Preciso agradecer, também, ao professor Luiz Tauhata, que me deu a oportunidade de fazer parte desse grupo maravilhoso, que é o SEMRA. Ele me acolheu ainda no mestrado e me ajudou muito com o doutorado. Minha mais sincera gratidão!

Agradeço também aos companheiros do IRD, Ronaldo, Poledna, Carlos, Paulo, Anderson, Antônio, Bira, Estela e Míriam, pela ajuda imensa com este trabalho, pelas conversas e risadas.

Obrigada também às minhas amigas Eduarda, Tainá e Bárbara que, desde o mestrado, me faziam companhia, me ajudavam e tornaram esta caminhada mais suave.

Agradeço a todos os familiares e amigos por entenderem as minhas ausências em muitos momentos, especialmente durante estes últimos meses.

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

DETERMINAÇÃO DE PROBABILIDADES DE EMISSÃO DE RAIOS-X  
CARACTERÍSTICOS E GAMAS COM DETECTOR DE CdTe

Amanda Ribeiro Correia

Junho/2016

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Programa: Engenharia Nuclear

Este trabalho descreve a padronização das atividades de  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{123}\text{I}$  pelos métodos de coincidência/anticoincidência e CIEMAT/NIST para serem usadas na determinação dos valores das probabilidades de emissão de Raios-X característicos e gamas destes radionuclídeos. Com este objetivo, foi construída uma curva de eficiência em função de energia do detector de CdTe utilizando vários radionuclídeos previamente calibrados por métodos absolutos. Os resultados obtidos foram consistentes, quando comparados com os valores apresentados na literatura.

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

DETERMINATION OF EMISSION PROBABILITIES OF CHARACTERISTICS X-  
AND GAMMA RAYS WITH CdTe DETECTOR

Amanda Ribeiro Correia

June/2016

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Department: Nuclear Engineering

This work describes the activities standardization of  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  and  $^{123}\text{I}$  by coincidence/anticoincidence and CIEMAT/NIST methods which were used in determining the values of emission probabilities of characteristic X-and gamma rays of these radionuclides. To this end, an efficiency curve in function of energy of a CdTe detector using various reference sources, calibrated previously by absolute methods, was determined. The results were consistent when compared to the values reported in the literature.



# Índice

<b>Resumo</b>	<b>vii</b>
<b>Abstract</b>	<b>viii</b>
<b>1. Introdução</b>	<b>1</b>
1.1. Objetivos e justificativas	3
<b>2. Revisão Bibliográfica</b>	<b>5</b>
2.1. Padronização do $^{177}\text{Lu}$	5
2.2. Padronização do $^{153}\text{Sm}$	6
2.3. Padronização do $^{123}\text{I}$	7
2.4. Detector de Telureto de Cádmi	8
<b>3. Fundamentos Teóricos</b>	<b>9</b>
3.1. Parâmetros atômicos e nucleares	9
3.1.1. Meia-vida	9
3.1.2. Atividade de uma amostra radioativa	11
3.2. Raios-X característicos	13
3.3. Detectores de radiação	14
3.3.1. Detectores de Telureto de Cádmi	14
3.3.1.1. Eficiência de detecção	17
3.4. Métodos diretos de padronização da grandeza Atividade	18
3.4.1. Contagem em coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	19
3.4.2. Contagem em anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	21
3.5. Métodos indiretos de padronização da grandeza Atividade	22

3.5.1. Espectrometria gama	22
3.5.2. Método CIEMAT/NIST de cintilação líquida	23
3.6. Curva de eficiência	25
3.7. Probabilidade de emissão de fótons ( $P_{\alpha\gamma}$ )	26
3.8. Radionuclídeos utilizados	27
3.8.1. $^{177}\text{Lu}$	27
3.8.2. $^{123}\text{I}$	28
3.8.3. $^{153}\text{Sm}$	30
<b>4. Metodologia</b>	<b>31</b>
4.1. Métodos de padronização de radionuclídeos	31
4.2. Preparação de fontes	31
4.2.1. Fontes sólidas em PVC	32
4.2.2. Fontes de cintilação líquida	34
4.3. Procedimento experimental	35
4.3.1. Padronização pelo método de coincidência $4\pi\beta(\text{CL})-\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$	35
4.3.2. Padronização pelo método de anticoincidência $4\pi\beta(\text{CL})-\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$	37
4.3.3. Padronização pelo método de cintilação líquida CIEMAT/NIST	38
4.3.4. Espectrometria gama com Telureto de Cádmi	39
4.3.4.1. O detector de Telureto de Cádmi	39
4.3.4.2. O uso do <i>Rise Time Discriminator</i> (RTD)	42
4.3.4.3. Pico escape	44
4.3.4.4. Curva de eficiência em função da energia	46
4.3.4.5. O <i>software</i> COLEGRAM	47

<b>5. Resultados e Discussão</b>	<b>51</b>
5.1. Padronização dos radionuclídeos	51
5.1.1. Curva de eficiência	53
5.1.2. $^{177}\text{Lu}$	56
5.1.3. $^{153}\text{Sm}$	64
5.1.4. $^{123}\text{I}$	70
<b>6. Conclusão</b>	<b>77</b>
<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>79</b>

## Índice de Figura

Figura 3.1 - Curva de decaimento de número de átomos à cada meia-vida	10
Figura 3.2 - Probabilidade de interação do CdTe	16
Figura 3.3 - Espectro com efeito fotoelétrico e Compton	16
Figura 3.4 – Diagrama de blocos e comportamento do sinal em cada etapa.	17
Figura 3.5 – Representação do método de calibração utilizando CIEMAT/NIST	24
Figura 3.6 - Esquema de decaimento simplificado do $^{177}\text{Lu}$	28
Figura 3.7 – Esquema de decaimento do $^{123}\text{I}$	29
Figura 3.8 – Esquema simplificado de decaimento do $^{153}\text{Sm}$	30
Figura 4.1 – Balança digital METTLER TOLEDO (MT-5)	32
Figura 4.2 – Esquema de confecção de fonte de PVC	33
Figura 4.3 – Fonte de PVC de $^{57}\text{Co}$	33
Figura 4.4 – Frasco de vidro contendo amostra de coquetel cintilador	34
Figura 4.5 - Diagrama de blocos do Sistema de Coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	37
Figura 4.6 – Diagrama de blocos do Sistema de anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	38
Figura 4.7 – Esquema do detector de CdTe	40
Figura 4.8 – Detector XR-100 e processador de pulso digital PX-5	40

Figura 4.9 – Detector com fonte em suporte de PVC	41
Figura 4.10 – Espectro de $^{57}\text{Co}$ sem a utilização de RTD	43
Figura 4.11 – Espectro de $^{57}\text{Co}$ com a utilização de RTD	43
Figura 4.12 – Espectro de uma fonte de $^{241}\text{Am}$ com a presença de pico escape	45
Figura 4.13 - Razão entre a soma das áreas dos 4 picos de escape e a área do fotopico da energia incidente.	46
Figura 4.14 – Interface do Specon 2000	49
Figura 4.15 – Interface do COLEGRAM no ajuste de uma fonte de $^{55}\text{Fe}$	50
Figura 5.1 - Resolução em energia (FWHM) dos detectores de HPGe e CdTe.	52
Figura 5.2 - Calibração do CdTe em canal versus energia.	52
Figura 5.3 – Curva de eficiência do detector de HPGe	55
Figura 5.4 – Curva de eficiência do detector do CdTe	55
Figura 5.5 – Curva de eficiência fornecida pelo fabricante do detector de CdTe	56
Figura 5.6 - Curvas de extrapolação para as medidas de coincidência e anticoincidência do $^{177}\text{Lu}$	58
Figura 5.7 – Resumo das concentrações de atividades para a solução mãe	61
Figura 5.8 – Espectro de $^{177}\text{Lu}$	62
Figura 5.9 – Região de multipletos do $^{177}\text{Lu}$ no COLEGRAM	63
Figura 5.10 - Curva de extrapolação para as medidas de coincidência do $^{153}\text{Sm}$	65

Figura 5.11 – Espectro de uma fonte do $^{153}\text{Sm}$ obtida pelo CdTe	65
Figura 5.12 – Região de multipletos de uma fonte do $^{153}\text{Sm}$ obtida no COLEGRAM	66
Figura 5.13 - Valores médios para cada fonte medida em coincidência do $^{153}\text{Sm}$	67
Figura 5.14 – Espectro do $^{123}\text{I}$	70
Figura 5.15 – Região de multipletos obtido pelo COLEGRAM para o $^{123}\text{I}$	71
Figura 5.16 – Espectro da Impureza do $^{123}\text{I}$ ( $^{121}\text{Te}$ e $^{125}\text{I}$ )	72
Figura 5.17 - Valores das concentrações de atividade das fontes de $^{123}\text{I}$ medidas pelo método de coincidência. As barras das incertezas se referem a fator de abrangência $k=2$ .	73
Figura 5.18- Curva de extrapolação para as fontes medidas em coincidência do $^{123}\text{I}$	74

## Índice de Tabelas

Tabela 3.1 - Valores de meia-vida de alguns radionuclídeos	10
Tabela 3.2 – Comparação dos valores de algumas propriedades físicas de semicondutores.	15
Tabela 4.1 – Fontes confeccionadas para este trabalho	34
Tabela 4.2 – Janelas utilizadas para o método de coincidência e anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$	36
Tabela 5.1 – Dados das fontes padrões usadas na determinação da curva de eficiência versus energia do detector de CdTe.	53
Tabela 5.2 - Concentração de atividade determinada para cada método do $^{177}\text{Lu}$	59
Tabela 5.3 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Anticoincidência para o $^{177}\text{Lu}$	59
Tabela 5.4 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência para o $^{177}\text{Lu}$	60
Tabela 5.5 - Valores médios da concentração de atividade do $^{177}\text{Lu}$ .	60
Tabela 5.6 - Valores comparativos do $P_{X,\gamma}$ do $^{177}\text{Lu}$ .	63
Tabela 5.7 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência do $^{153}\text{Sm}$	67
Tabela 5.8 - Componentes da incerteza no método CIEMAT/NIST para o $^{153}\text{Sm}$	68
Tabela 5.9 - Valores comparativos do $P_{X,\gamma}$ do $^{153}\text{Sm}$ .	69

Tabela 5.10 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência para o $^{123}\text{I}$	73
Tabela 5.11 – Componentes da incerteza no método CIEMAT/NIST para o $^{123}\text{I}$	75
Tabela 5.12 - Incertezas padrão relativa dos componentes no método Antico incidência para o $^{123}\text{I}$	75
Tabela 5.13 - Valores comparativos do $P_{X,Y}$ do $^{123}\text{I}$	76



## **Lista de Símbolos**

TDCR – Triple to Double Coincidence Ratio.

CIEMAT – Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas.

NIST - National Institute of Standards and Technology

CdTe – Telureto de Cádmio

LNMRI – Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes

BIPM – Bureau International des Poids et Mesures

IRD – Instituto de Radioproteção e Dosimetria

LNHB – Laboratoire National Henri Becquerel

IAEA – International Atomic Energy Agency

HPGe – Germânio Hiper Puro

NaI(Tl) – Iodeto de Sódio dopado com Tálcio

RTD – Rise Time Discriminator

FWHM – Full Width at half Maximum (Largura à meia altura)

## Capítulo 1

# INTRODUÇÃO

A determinação da atividade de radionuclídeos utilizados em medicina nuclear e a determinação de parâmetros atômicos e nucleares, tais como meias-vidas e probabilidades de emissão de fótons, é necessária para permitir a calibração exata de instrumentos e fontes radioativas, e conseqüentemente, à otimização do cálculo da dose interna administrada ao paciente num procedimento médico.

Os métodos mais utilizados na padronização de radionuclídeos são os métodos universalmente conhecidos de coincidência/anticoincidência  $4\pi\beta-\gamma$  e os da cintilação líquida TDCR e CIEMAT/NIST.

Alguns radionuclídeos tais como  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{177}\text{Lu}$  são largamente utilizados em medicina nuclear terapêutica por possuírem meias-vidas curtas emitindo partículas beta de alta energia e raios gama com energias médias e baixas. O  $^{123}\text{I}$  decai por captura eletrônica, com meia vida bastante curta, e não emite partículas betas, sendo, portanto, utilizado para o diagnóstico de mau funcionamento da tireoide, principalmente para procedimentos pediátricos. Entretanto, ele emite numerosos Raios-X característicos que irão contribuir para a dose administrada ao paciente. Para estes elementos é importante a determinação exata dos parâmetros atômicos e nucleares de cada um deles, bem como de suas impurezas radionuclídicas, pois irá contribuir na redução de doses administradas ao paciente durante o diagnóstico ou tratamento, além do próprio interesse científico que o conhecimento propicia.

Na medicina nuclear, a determinação exata dos parâmetros atômicos e nucleares de radionuclídeos e de suas impurezas radionuclídicas permite também o estudo de futuros radiofármacos que poderão vir a substituir ou se tornarem uma alternativa para

aqueles utilizados atualmente, tanto na área de radiodiagnóstico quanto na radioterapia, visando um custo menor de produção do mesmo, sem acarretar danos ao tratamento do paciente. O conhecimento exato da atividade do radionuclídeo, bem como seu esquema de decaimento, é fundamental para a utilização destes elementos. O Samário-153 ( $^{153}\text{Sm}$ ) é um paliativo para dor oriunda de metástases ósseas, sendo distribuído semanalmente pelo IPEN. Com meia-vida de 1,92 dias (LNHB (c), 2016), seu decaimento se dá através de emissões beta e gama, tornando-se o Európio-153 ( $^{153}\text{Eu}$ ).

O Lutécio-177 ( $^{177}\text{Lu}$ ), e mais recentemente o Ítrio-90 ( $^{90}\text{Y}$ ), são empregados no tratamento de diferentes tipos de cânceres, tais como próstata, ovário, ósseo e pulmão. (DVORAKOVA, 2008). Esse radioisótopo possui uma meia-vida de 6,647 dias (LNHB (a), 2016) e seu decaimento também ocorre por emissão beta e gama, transformando-se em Háfnio-177 ( $^{177}\text{Hf}$ ).

O Iodo-123 ( $^{123}\text{I}$ ) é um radionuclídeo comumente utilizado em diagnósticos na medicina nuclear, pois tem meia-vida extremamente curta (13,22 horas). O decaimento deste isótopo acontece por captura eletrônica, majoritariamente para o nível de 159 keV (99,22%), tornando-se Telúrio-123 ( $^{123}\text{Te}$ ). (LNHB (b), 2016)

O conhecimento da atividade do radionuclídeo em aplicações vinculadas à indústria nuclear é importante em: análise não destrutiva do material combustível; na análise da queima de combustível nuclear (*burn-up*); na identificação e determinação dos componentes estruturais presentes no elemento combustível (HANSEN et al., 1976); na proteção radiológica; e em projetos de novos reatores (USMAN et al., 1998). Finalmente, deve-se ressaltar que para se determinar a atividade de um radionuclídeo, independentemente da aplicação ou propósito, é necessário também conhecer sua meia-vida e a incerteza associada.

## 1.1. Objetivos e Justificativas

Este trabalho propõe-se a apresentar uma alternativa para a determinação das probabilidades de emissão de fótons de baixa energia (X,γ) de alguns radionuclídeos importantes na medicina nuclear tais como  $^{153}\text{Sm}$   $^{177}\text{Lu}$ , que decaem por emissão beta-gama e  $^{123}\text{I}$  que decai por captura eletrônica. Tradicionalmente se utiliza o detector de germânio puro cuja resolução em energia para esta faixa é similar ao detector que o irá substituir: o telureto de cádmio (CdTe).

Outro detector que é utilizado na faixa de energia citada e possui uma resolução melhor que o CdTe e o germânio, é o Si(Li). A desvantagem deste e também do germânio é quanto à necessidade de manutenção operacional, pois eles necessitam de resfriamento com nitrogênio líquido, enquanto o detector de CdTe opera sem a necessidade de um resfriamento externo.

Para que se alcance o objetivo principal deste trabalho, a determinação das probabilidades de emissão de Raios-X e gama, é necessária a calibração do detector de CdTe para a eficiência em função da energia. Será, então, gerada uma curva de eficiência em função da energia dos fótons na região de estudo e para tal, serão utilizados os radionuclídeos previamente calibrados de  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{106}\text{Ho}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  e  $^{152}\text{Eu}$  disponíveis no Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) e com rastreabilidade ao sistema metrológico internacional através da participação em comparações chaves internacionais organizadas pelo *Bureau International des Poids et Mesures* (BIPM).

Para a determinação da atividade das fontes radioativas, necessária para o estudo das probabilidades de emissão de fótons, os radionuclídeos escolhidos serão padronizados por diversos métodos disponíveis nos laboratórios de Metrologia de

Radionuclídeos do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (LNMRI/IRD) tais como coincidência/anticoincidência  $4\pi\beta\gamma$  e cintilação líquida (CIEMAT/NIST).

Por sua relevância na medicina nuclear diagnóstica e terapêutica, os radionuclídeos propostos a serem estudados são  $^{123}\text{I}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{177}\text{Lu}$ . As impurezas radionuclídicas geradas durante a produção desses radionuclídeos também serão quantitativamente determinadas por espectrometria gama, pois elas interferem tanto na padronização da atividade bem como na determinação das probabilidades de emissão.

Para a escolha dos radionuclídeos que serão estudados, a justificativa se deve à forte presença destes elementos na medicina nuclear e suas amplas utilizações em tratamentos e investigações médicas. A determinação das probabilidades de emissão de Raios-X e gama se justifica através da contribuição com a literatura.

O estudo proposto traz alguns benefícios tais como a implantação no LNMRI de um novo método para espectrometria de fótons de baixa energia e para determinar com maior exatidão e menor incerteza dos parâmetros atômicos de radionuclídeos e de sua impureza radionuclídica de interesse em medicina nuclear. E também propicia a geração de dados de decaimento, os quais poderão participar de programas interlaboratoriais promovidos periodicamente pelo BIPM.

## Capítulo 2

### REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

#### 2.1. Padronização do $^{177}\text{Lu}$

Este radionuclídeo de meia-vida de 6,647 dias (LNHB (a)) é bastante utilizado em tratamento de vários tipos de cânceres. Segundo MILENIC, 2004, o  $^{177}\text{Lu}$  possui um alcance máximo de partículas no tecido em torno de 2 mm, tornando-se um radionuclídeo mais favorável para aplicações de radioterapia em tumores menores. Em 2011, segundo artigo publicado por WOJDOWSKA, 2015, a Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) iniciou um projeto de pesquisa de coordenação internacional, focado no desenvolvimento e avaliações pré-clínicas de radiofármacos terapêuticos, baseados no Lutécio, para tratamento de linfomas do tipo não-Hodgkin.

ZIMMERMAN, 2001, padronizou o  $^{177}\text{Lu}$  no Instituto (NIST) pelo método de cintilação líquida  $4\pi\beta$  (CIEMAT/NIST) utilizando o sistema de traçador de eficiência padrão do  $^3\text{H}$ . Algumas medidas de confirmação foram realizadas pelo método de espectrometria gama  $4\pi$  NaI(Tl). As atividades das fontes foram determinadas ao longo de 10 meses, com uma incerteza expandida ( $k=2$ ) na atividade de 0,8%. Ainda segundo ZIMMERMAN, 2001, as impurezas foram analisadas com o método de espectrometria de raios de raios gama, com o detector de GeHP e a presença de  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  foi indicada a um nível de 0,02% do  $^{177}\text{Lu}$  nas datas de referências das fontes.

IWAHARA e colaboradores, 2008, também padronizou este radionuclídeo, entretanto utilizando os métodos de coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$  e anticoincidência ( $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$ ). Os resultados obtidos foram bastante semelhantes entre si e apresentaram incertezas de 0,74% para o método de coincidência e 0,50% para o

anticoincidência, o que segundo IWAHARA, 2008, já era esperado, uma vez que várias correções instrumentais necessárias no primeiro método são eliminadas ou minimizadas no segundo. No método de coincidência essas correções são a de tempo morto, tempo de resolução e ajuste de retardo relativo beta-gama.

REZENDE, 2012, determinou as medidas das atividades do  $^{177}\text{Lu}$  por dois métodos diferentes de padronização: coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$  e anticoincidência  $(4\pi\beta(\text{LS})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl})))$ , utilizando a técnica da extrapolação. As medidas encontradas foram bastante consistentes com incertezas combinadas ( $k = 1$ ) de 0,63 % para o método de coincidência e 0,25 % para o sistema de anticoincidência.

## 2.2. Padronização do $^{153}\text{Sm}$

Segundo VIÑA, 2005, este é o radionuclídeo que tem vasta aplicação clínica no que diz respeito à metástase óssea, tendo sido comercializado na Espanha no ano 2000. O  $^{153}\text{Sm}$ , com meia vida de 1,92855 dias e emissor de raios beta e gama (LNHB (c), 2016), possui um alcance de penetração em tecidos moles de 3,1 mm e alcance ósseos na faixa de 1,7 mm.

BOWLES, 1998, também padronizou o  $^{153}\text{Sm}$  pelo método de coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ , utilizando um detector de NaI para a detecção dos raios gama. Este trabalho também determinou as probabilidades de emissão dos raios gama, utilizando um detector de germânio. A incerteza da padronização foi de 0,09% para  $1\sigma$ . O valor encontrado para a intensidade do principal raio gama, 103,18 keV foi de 0,285 com incerteza de 0,005.

Em seu trabalho, SCHÖTZIG, 1999, padronizou o  $^{153}\text{Sm}$  através dos sistemas de coincidência  $4\pi\beta-\gamma$  e cintilação líquida, com a técnica do CIEMAT/NIST utilizando o método traçador de  $^3\text{H}$ . O objetivo, a partir destes valores encontrados seria determinar

as probabilidades de emissão de Raios-X e gama. Os resultados encontrados para as concentrações de atividade, segundo o autor, apresentavam diferença de 0,1% entre eles, com incertezas relativas de 0,1% para o sistema de coincidência e 0,2% para o método CIEMAT/NIST.

DZIEL, 2014, padronizou o  $^{153}\text{Sm}$  através de três métodos diferentes: o coincidência a anticoincidência  $4\pi(\text{LS})-\gamma$  e o método de cintilação líquida CIEMAT/NIST. As incertezas obtidas para cada um dos dois primeiros sistemas foram de 0,4 %, enquanto a terceira técnica apresentou incerteza de 0,7%.

### **2.3. Padronização do $^{123}\text{I}$**

Este radionuclídeo de meia-vida de 13,2234 horas (LNHB (b), 2016) é bastante utilizado nos Serviços de Medicina Nuclear. Ele emite, preferencialmente, um raio gama de 159 keV, segundo (LNHB (b), 2016), é muito utilizado na realização de exames em diversos órgãos do corpo humano. Entretanto é mais comumente empregado na cintilografia da tireoide, sendo o radiofármaco uma solução de Iodeto de sódio (NaI).

REHER, 1984 foi um dos precursores da padronização do  $^{123}\text{I}$ . Em seu trabalho, a padronização foi feita por cinco laboratórios, utilizando quatro sistemas diferentes: Coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})-\text{X}-\gamma$ , contador integral  $4\pi \gamma$  [NaI(Tl)], espectrometria de raios gama com detector de HPGe e câmara de ionização. Os resultados obtidos foram bastante semelhantes com incertezas correspondentes à  $1\sigma$ .

KOSKINAS, 2012 apresentou em seu artigo os valores para a taxa de desintegração e as probabilidades de emissão de raios gama do  $^{123}\text{I}$ . Neste trabalho, inicialmente foi feita a padronização do radionuclídeo utilizando um sistema de coincidência e a curva de extrapolação obtida foi comparada com outra, gerada a partir



de uma simulação em Monte Carlo. Tanto a concentração de atividade quanto a energia gama de 159 keV foram obtidas, segundo a autora, com boa exatidão.

#### **2.4. Detector de Telureto de Cádmio (CdTe)**

Segundo SORDO, 2009, durante as duas últimas décadas, o detector de Telureto de Cádmio (CdTe) tem tido considerável aumento de interesse como detector de Raios-X e gama. Comparado aos espectrômetros mais comuns, baseados em Silício (Si) ou germânio (Ge), o CdTe demonstra alta eficiência intrínseca e bom desempenho à temperatura ambiente e são adequados quando se trata de detecção compacta e de alta confiabilidade.

ANDUJAR, 2004, em seu trabalho estudou as características de vários detectores, dentre eles o CdTe. Foram comparadas as eficiências, as mínimas atividades detectáveis e as resoluções em energia. O CdTe se mostrou com melhor resolução em energia que o detector de NaI(Tl), entretanto apresentou valores de eficiência menores que o HPGe e o NaI(Tl).

REDUS, 2009, realizou uma caracterização de um detector de CdTe para espectrometria de Raios-X. Com este trabalho, ele conclui que o CdTe possui uma sensibilidade muito maior que o detector de Silício para energias maiores que 20 keV, correspondentes à camada K e para elementos maiores que o Rutênio.

Para este detector, existe pouca literatura direcionada para espectrometria voltada para a metrologia de radionuclídeos. A principal utilização encontrada na literatura está direcionada para a espectrometria de Raios-X originados de geradores de Raios-X.

## Capítulo 3

# FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste capítulo serão apresentadas algumas definições sobre conceitos e técnicas relacionadas ao trabalho proposto, para uma melhor compreensão dos fundamentos que deram base ao trabalho.

### 3.1. Parâmetros Atômicos e Nucleares

Os estudos dos parâmetros atômicos e nucleares são utilizados para determinação dos esquemas de decaimento radioativo de um nuclídeo. Representam um meio importante na caracterização e quantificação do material radioativo. Estão incluídos nos parâmetros nucleares: a meia-vida; energia total de decaimento ( $Q$ ); energias de partículas  $\alpha$  e  $\beta$ , Raios-X e  $\gamma$ , e suas respectivas probabilidades de emissão; coeficientes de conversão interna; energias de captura eletrônica, de elétrons Auger e de conversão, entre outros.

#### 3.1.1. Meia-vida

A meia-vida,  $T_{1/2}$ , é o tempo necessário para o número de átomos radioativos presentes numa determinada amostra decair à metade do seu valor inicial (Figura 3.1). Ela é considerada um parâmetro primário no processo de decaimento radioativo (NICHOLS, 2001). Este período pode ser classificado como meia-vida física e biológica. A primeira, como o próprio nome sugere, é uma característica física do radionuclídeo, pois é função do número de massa. Cada elemento tem o seu tempo de decaimento. Os radioisótopos utilizados na medicina nuclear possuem meia-vida física

bastante curta, o que se torna uma vantagem, uma vez que o paciente fica exposto por pouco tempo.

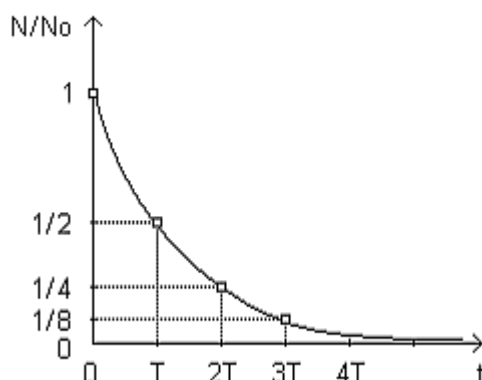


Figura 3.1 - Curva de decaimento de número de átomos à cada meia-vida (OKUNO, 2010)

Já a meia-vida biológica é definida como sendo o tempo necessário para que a metade da quantidade inicial do nuclídeo seja eliminada pelo órgão. Na tabela 3.1, são apresentados alguns valores de meias-vidas físicas e biológicas de alguns radionuclídeos. Para este trabalho, apenas a meia-vida física foi considerada.

Tabela 3.1 - Valores de meia-vida de alguns radionuclídeos (OKUNO, 2010)

Radioisótopo	Meia-vida em dias		
	$T_{1/2fis}$	$T_{1/2bio}$	$T_{1/2efetivo}$
$^3H$	$4,5 \times 10^3$	12	12
$^{14}C$	$2,1 \times 10^6$	40	40
$^{22}Na$	850	11	11
$^{32}P$	14,3	1155	14,1
$^{35}S$	87,4	90	44,3
$^{59}Fe$	45	600	42
$^{60}Co$	$1,93 \times 10^3$	10	10
$^{123}I$	0,54	138	0,54

### 3.1.2. Atividade de uma amostra radioativa

Em um átomo instável, as mudanças em torno do núcleo acontecem de forma aleatória. Entretanto é possível prever que, o número deste tipo de transformações, que se realizam sob a forma de decaimento, ocorre de forma proporcional ao número de átomos que ainda irão se transformar naquele mesmo instante. Ou seja, a probabilidade de decaimento por átomo a cada segundo precisa ter um valor fixo. A este coeficiente, foi dado o nome de constante de decaimento, representado por  $\lambda$ . Cada radionuclídeo possui um  $\lambda$  próprio, como uma característica do elemento.

Então, a atividade que pode ser definida como sendo, a taxa de decaimento do número de radionuclídeos ( $N$ ), num dado instante  $t$ , em função da constante  $\lambda$ , pode ser descrita matematicamente por:

$$dN = -\lambda N(t)dt \quad (3.1)$$

Onde o sinal negativo indica um decréscimo no valor de  $N$  com o aumento de  $t$ . Uma vez que a meia-vida ( $T_{1/2}$ ) é o tempo necessário para que a quantidade desses átomos caia à metade, pode-se escrever:

$$t = T_{1/2} \rightarrow N = \frac{N_0}{2} \quad (3.2)$$

Logo:

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (3.3)$$

Então, escrevendo a equação 3.1 como:

$$\frac{dN}{N} = -\lambda dt \quad (3.4)$$

Sequencialmente integrando a equação 3.4, tem-se:

$$\int_{N_0}^N \frac{dN}{N} = -\lambda \int_0^t dt \quad (3.5)$$

Como resultado, pode-se obter então:

$$\ln\left(\frac{N}{N_0}\right) = -\lambda t \quad (3.6)$$

$$\frac{N}{N_0} = e^{-\lambda t} \quad (3.7)$$

Reescrevendo a equação 3.5, como sendo a uma lei de decaimento nuclear exponencial, que foi apresentada em um artigo em 1902 por Ernest Rutherford e Frederick Soddy, tem-se: (OKUNO, 2010; ARAÚJO, 2015)

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (3.8)$$

A atividade de uma amostra, então, pode ser escrita por:

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (3.9)$$

A unidade utilizada para a atividade, no Sistema Internacional, é o becquerel (Bq), que corresponde a uma desintegração por segundo. Outra unidade que ainda é utilizada em alguns lugares é o curie (Ci), homenagem à Madame Curie, e que corresponde ao número de desintegrações por segundo de uma amostra com 1 grama de <sup>226</sup>Ra. A conversão entre essas duas unidades é dada por:

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

### 3.2. Raios-X característicos

Os Raios-X são produzidos a partir da aceleração do feixe de elétrons que parte do catodo, com alguns keV de energia, até colidir com o alvo (anodo). Essa produção gera dois tipos de Raios-X: o de frenamento, que é originado a partir da desaceleração dos elétrons durante a penetração no anodo e o característico.

Alguns processos físicos são responsáveis por retirar elétrons de uma camada e deixar um buraco que, imediatamente, é preenchido por outro elétron da camada seguinte. Por exemplo, se um elétron da camada K for arrancado, um da camada L pode ocupar essa vacância. Consequentemente, o espaço deixado na camada L, será completado por um elétron da camada M e assim sucessivamente.

Para essa transição de elétrons de uma camada mais externa para uma mais interna, a energia excedente é liberada sob a forma de radiação eletromagnética que equivale à diferença entre as energias das camadas. Assim:

$$E_{\text{fóton(raio-X)}} = E_L - E_K \quad (3.10)$$

Por tanto, os Raios-X característicos são emitidos pelos elementos quando seus elétrons fazem transição entre os níveis de energia. Como cada radionuclídeo tem um conjunto único de nível de energia, então ele emitirá um único grupo de Raios-X característicos correspondentes.

Os Raios-X característicos apresentam este nome devido aos fótons emitidos serem monoenergéticos e, pelos valores determinados de energia e intensidade relativa, poder determinar o elemento químico em questão. Além disso, o espectro de energia dos Raios-X característicos é do tipo discreto.

### **3.3. Detectores de radiação**

Um detector de radiação é um instrumento que consegue identificá-la, quando é submetido a uma região onde ela esteja atuando. Muitas são as formas da radiação interagir com o material que foi destinado a registrar ou determinar as características dessa radiação. Algumas dessas interações ocorrem através de geração de luz, de cargas elétricas, de calor, sensibilização de películas fotográficas e mudanças em alguns meios químicos. Em sua maioria, um sistema de detecção é composto pelo próprio detector, que é constituído por um material sensível à radiação e um conjunto de equipamentos capaz de transformar essa informação vinda do detector em valores necessários para a determinação de alguma grandeza.

#### **3.3.1. Detectores de Telureto de Cádmi**

Há tempos vem acontecendo estudos de materiais para a elaboração de detectores capazes de identificar Raios-X e  $\gamma$  e, aliado a isso, que possuam alto coeficiente de absorção, boa resolução em energia e que tenham fácil manuseio. A maioria dos detectores possui uma ou outra dessas características.

Por exemplo, os cintiladores inorgânicos que estejam acoplados a fotomultiplicadoras ou fotodiodos, apresentam alto coeficiente de absorção devido à sua densidade. Em contrapartida, apresentam baixa resolução energética.

O caso dos semicondutores, como Silício e HPGe, por exemplo. Possuem resolução em energia excelente, entretanto, no caso do Silício, o coeficiente de absorção para fótons com energia maior que 100 keV é baixo. Para detectores de HPGe, é

necessário em resfriamento a temperaturas criogênicas, pois a energia de *band gap* (necessária para arrancar um elétron da malha que compõe o material) é muito pequena.

Então, uma opção seriam os detectores de Telureto de Cádmiio (CdTe). Pois eles apresentam ótimas resoluções em energia sem a necessidade do resfriamento termoelétrico externo (Efeito Peltier). A tabela 3.2 apresenta valores comparativos da densidade, do número atômico, da energia do *band gap* ( $E_{GAP}$ ), para a energia necessária na produção de um par elétron-buraco ( $\epsilon_{par}$ ) e a melhor resolução em energia em 100 keV ( $\Delta E_{intr}$ ).

*Tabela 3.2 – Comparação dos valores de algumas propriedades físicas de semicondutores. (LIMOUSIN, 2003)*

Semicondutor	Densidade (g/cm <sup>3</sup> )	Número atômico	$E_{GAP}$ (eV)	$\epsilon_{par}$ (eV/par)	$\Delta E_{intr}$ (eV) em 100 keV
Si	2,33	14	1,12	3,6	450
Ge	5,33	32	0,67	2,9	400
CdTe	5,85	48; 52	1,44	4,43	700
Cd <sub>0,9</sub> Zn <sub>0,1</sub> Te	5,81	48; 30; 52	1,6	4,6	620

Como pode ser observado na tabela 3.2, a alta densidade do CdTe faz com que ele tenha um alto coeficiente de absorção e o alto valor do *bandgap*, o que permite a utilização do detector sem a necessidade de resfriamento externo.

O telureto de cádmio (CdTe) é bastante utilizado no meio científico atualmente, por conta das características deste material. Uma destas propriedades é a combinação dos elementos que o compõem: O Telúrio ( $Z = 52$ ) e o Cádmiio ( $Z = 48$ ). A junção deles proporciona uma maior probabilidade de interação por efeito fotoelétrico, quando se compara com o efeito Compton na faixa de até 50 keV de energia, como observado na figura 3.2.



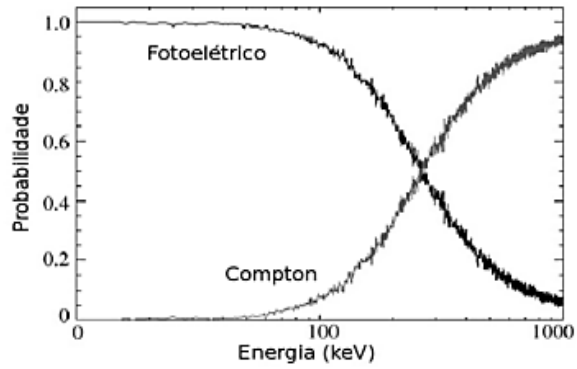


Figura 3.2 - Probabilidade de interação do CdTe

Essa alta probabilidade de interação por efeito fotoelétrico ocorre justamente devido ao alto valor das massas atômicas dos elementos envolvidos. A figura 3.3 apresenta exatamente esta relação entre os dois efeitos: picos bastante elevados para efeito fotoelétrico e bem mais baixos para o Compton.

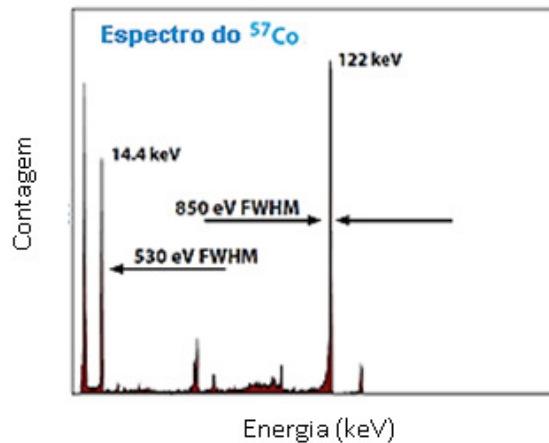


Figura 3.3 - Espectro com efeito fotoelétrico e Compton (AMPTEK, 2016)

Ao entrar no detector, uma partícula produz vários pares elétron-buraco e o número desses pares é diretamente proporcional à energia aplicada da partícula incidente. Na faixa de energia considerada, até 300 keV, os fótons podem interagir primeiro com um elétron-alvo por efeito Compton ou fotoelétrico. Parte desta energia

colocada no detector se transforma em energia térmica. A energia total depositada pela partícula incidente no detector, ou seja, a carga total equivale ao pulso de corrente produzida pela carga coletada pelos eletrodos. Esse pulso é enviado para o pré-amplificador e conectado a um amplificador para ser analisado posteriormente. O esquema apresentado na figura 3.4, ilustra o processamento do sinal e o comportamento do sinal em cada módulo.

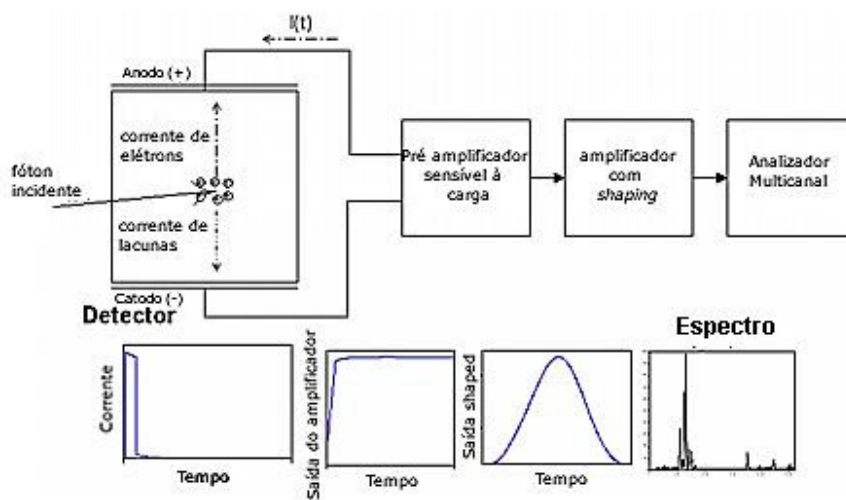


Figura 3.4 – Diagrama de blocos e comportamento do sinal em cada etapa. (AMPTEK, 2016)

### 3.3.1.1. Eficiência de detecção

A eficiência de um detector de radiação pode ser definida como sendo a probabilidade de se detectar uma partícula ou um fóton que tenha sido emitido pela fonte. A eficiência absoluta, matematicamente, é estabelecida como a razão entre a taxa de contagem do fotopico e a taxa de fótons com uma energia emitida pela fonte de radiação. A eficiência intrínseca considera a taxa de fótons que tenham atingido a superfície do detector, ao invés dos fótons emitidos pela fonte.

A equação que rege a eficiência do fotopico ( $\varepsilon$ ) é apresentada em 3.11 (KNOLL, 1989)

$$\varepsilon = \frac{C}{t \cdot A \cdot P_{x,\gamma}} \quad (3.11)$$

Onde:

C = Contagem relativa ao fotopico

t = Tempo de aquisição (s)

A = Atividade da fonte no momento da medição ( $Bq = s^{-1}$ )

$P_{x,\gamma}$  = Intensidade de emissão para a energia em análise

### 3.4. Métodos diretos de padronização da grandeza Atividade

Os métodos diretos de padronização são também conhecidos como absolutos ou primários. Podem ser apresentados como procedimentos que não necessitam de um padrão prévio para comparação com os resultados obtidos e que expressem seus valores bem como as incertezas da medição em termos do Sistema Internacional de Unidades.

Estas técnicas determinam a atividade de um elemento que tenha sido medido, a partir da contagem obtida. É uma leitura direta, embora algumas vezes se faça necessário o conhecimento do esquema de decaimento do radionuclídeo em questão. A atividade determinada passa a ser então um padrão primário, que possui os valores integrais desta grandeza.

Para este trabalho, foram utilizados os seguintes métodos absolutos de padronização: contagem em coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  e contagem em anticoincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ .

### 3.4.1. Contagem em coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

O método de contagem em coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  é universalmente adotado nos principais laboratórios nacionais de metrologia de radionuclídeos para determinar a atividade de um radionuclídeo. Como é um método absoluto ele não necessita de um padrão prévio para comparação. Esse procedimento é principalmente utilizado quando se tem cascatas simples alfa-gama ou beta-gama. É também usado para radionuclídeos que decaem por captura eletrônica e emissores beta puros, quando se usa um traçador beta-gama.

A padronização neste caso se utiliza de dois detectores: um do tipo proporcional ou cintilador líquido para a contagem beta e toda a cadeia eletrônica associada (canal beta) e outro do tipo germânio (HPGe) ou Iodeto de Sódio dopado com Tálcio (NaI(Tl)), para a contagem gama e sua cadeia eletrônica correspondente (canal gama). Um circuito de coincidência é utilizado para fazer a detecção dos eventos em coincidência provenientes dos canais beta e gama.

Com os valores das contagens dos dois detectores, juntamente com os do circuito de coincidência, é possível determinar os parâmetros necessários para a obtenção da atividade da amostra. Aliado aos dados oriundos da instrumentação se fazem necessários algumas correções, que são relativas ao tempo morto, tempo de resolução, de radiação de fundo, coincidências acidentais, retardo relativo beta-gama e decaimento. (BAERG, 1964; KAWADA, 1972; BAERG, 1966)

Considerando  $N_0$  como atividade por unidade de massa de uma fonte radioativa, as contagens nos dois canais e no circuito de coincidência são dadas pelas seguintes equações:

$$N_{\beta} = \varepsilon_{\beta} N_0 \quad (3.11)$$

$$N_{\gamma} = \varepsilon_{\gamma} N_0 \quad (3.12)$$

$$N_C = \varepsilon_{\gamma} \varepsilon_{\beta} N_0 \quad (3.13)$$

onde  $N_{\beta}$ ,  $N_{\gamma}$  e  $N_C$  são as taxas de contagem dos canais  $\beta$ ,  $\gamma$  e de coincidência respectivamente.  $\varepsilon_{\beta}$  e  $\varepsilon_{\gamma}$  as eficiências de detecção beta e gama. As eficiências dos canais  $\beta$  e  $\gamma$  também podem ser obtidas através das equações 3.11 e 3.12.

Multiplicando-se  $N_{\beta}$  por  $N_{\gamma}$  e sequencialmente dividindo por  $N_C$ , conclui-se que:

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = \frac{\varepsilon_{\beta} N_0 \cdot \varepsilon_{\gamma} N_0}{\varepsilon_{\gamma} \varepsilon_{\beta} N_0} \quad (3.14)$$

$$\frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_C} = N_0 \quad (3.15)$$

A equação 3.15 mostra que é possível determinar a atividade ( $N_0$ ) sem a informação da eficiência dos canais beta e gama. Entretanto só é valida para radionuclídeos que apresentem esquema de decaimento semelhante ao do  $^{60}\text{Co}$ .

A maioria dos elementos emissores de radiação  $\beta$ , por possuírem um esquema de decaimento mais complicado, possuem emissão de Raios-X, raios  $\gamma$  e elétrons Auger, por exemplo. Com isso, se fazem necessárias algumas correções e reescrevendo a equação 3.15, tem-se:

$$N_{\beta} = N_0 \left[ \varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left( \frac{\alpha \varepsilon_{Ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (3.16)$$

$$N_{\gamma} = \frac{N_0 \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (3.17)$$

$$N_C = N_0 \left[ \frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_C \right] \quad (3.18)$$

Onde  $\alpha$  é o coeficiente de conversão interna e  $\varepsilon_{EC}$  e  $\varepsilon_{\beta\gamma}$  representam as eficiências do canal beta no que tange à elétrons de conversão interna e radiação gama.  $\varepsilon_C$  representa a eficiência de contagem em coincidência gama-gama.

### **3.4.2. Contagem em anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$**

O método de anticoincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  pode ser encarado como um complemento com relação ao método de coincidência, podendo também ser utilizado para padronização de radionuclídeos que possuem estado meta-estável, com a emissão de radiação retardada do tipo gama. (BRYANT, 1962; BOUCHARD, 2002)

O funcionamento do método de anticoincidência é bastante similar ao de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ . Entretanto nesta técnica, os raios gama que não estão relacionados às partículas betas, são contabilizados e a taxa de contagem oriunda do canal de coincidência passa a ser o valor resultante da subtração entre, a radiação total gama e a taxa de contagem não correlacionada de beta com gama. (BRYANT, 1967)

Um fator favorável a este método é a ausência de algumas das correções que se fazem necessárias para o sistema de contagem em coincidência, uma vez que é introduzida a técnica de contagem em tempo vivo. (DA SILVA, 2008)

Segundo BRYANT, 1962, para ser considerado um evento gama de anticoincidência, é necessário que, num intervalo maior do que  $10^{-10}$ s, um sinal oriundo de um evento gama suceda ou preceda um sinal de natureza beta. Intervalos de tempo menores do que  $10^{-10}$  segundos são considerados para radionuclídeos que decaem imediatamente em coincidência. Por tanto, a atividade de um determinado radionuclídeo pode ser determinada pela equação utilizada no sistema de coincidência. A única diferença está na taxa de contagem  $N_c$  que, para o sistema de coincidência é a diferença entre a taxa de contagem gama total e a taxa de contagem gama de eventos não

correlacionados, que pode ser observada na equação 3.19, onde todos os elementos estão devidamente corrigidos para a radiação de fundo

$$A = \frac{N_{\beta} N_{\gamma}^w}{N_{\gamma}^w - N_{\gamma}^{wnc}} \quad (3.19)$$

Sendo:

$N_{\beta}$  = taxa de contagem para o canal beta

$N_{\gamma}^w$  = taxa de contagem gama na janela

$N_{\gamma}^{wnc}$  = taxa de contagem gama de eventos não correlacionados

### **3.5. Métodos indiretos de padronização da grandeza Atividade**

O método indireto, também chamado relativo, funciona a partir de uma comparação com uma atividade de referência. Entretanto, é necessário conhecer a eficiência do detector em que se está trabalhando. Para isso, utiliza-se uma fonte radioativa que tenha sido calibrada através dos métodos absolutos.

O método secundário precisa, então, de um padrão primário para a determinação da grandeza Atividade do radionuclídeo. Para este trabalho, foram utilizados dois métodos indiretos: o de cintilação líquida CIEMAT/NIST e a espectrometria gama.

#### **3.5.1. Espectrometria gama**

Este método utiliza a espectrometria de fótons com detectores como germânio, Si(Li) ou cintilador NaI(Tl). Estes detectores são amplamente utilizados na determinação da atividade de radionuclídeos, quando se precisa conhecer o elemento

radioativo em questão. E isto é feito através dos fotopicos de energia emitidos que são apresentados no espectro e são característicos para cada radionuclídeo.

Este sistema é rastreado aos sistemas absolutos de medição e ao sistema de referência com câmara de ionização, através de comparações intralaboratoriais e interlaboratoriais internacionais realizadas com bastante frequência. Este método além de permitir a identificação de radionuclídeos emissores de fótons, ele é bastante eficaz para a determinação da atividade do radionuclídeo, além de executar as medições em um intervalo de tempo curto. Outras vantagens são a sua incerteza e exatidão dos dados obtidos e diversidade de geometrias das amostras a serem utilizadas. A espectrometria gama é um método que calibra o radionuclídeo de forma a reduzir a da contribuição da impureza que possa haver nele.

### **3.5.2. Método CIEMAT/NIST de cintilação líquida**

Este método foi desenvolvido na década de 80 em parceria entre os laboratórios CIEMAT na Espanha e o NIST dos Estados Unidos e também é conhecido pelo nome de CIEMAT/NIST. Este sistema utiliza um cintilador comercial que possui duas fotomultiplicadoras, em coincidência, posicionadas a 180° uma da outra.

O funcionamento deste sistema se baseia no método estatístico do parâmetro livre e o conhecimento de cada parâmetro está relacionado à característica do sistema de medição. Portanto, pode-se perceber que este é um método secundário de padronização de radionuclídeos, pois necessita de um padrão primário para a determinação da atividade da amostra radioativa. (LOUREIRO, 2013)

O elemento radioativo utilizado como padrão para a utilização do CIEMAT/NIST é o  $^3\text{H}$ . Este elemento foi escolhido porque, dentre outros fatores, ele possui meia-vida relativamente longa, é emissor de baixa energia (o que aumenta a



sensibilidade do equipamento) e encontra-se disponível em soluções com baixíssima impureza. O padrão de  $^3\text{H}$  monitora a eficiência de contagem do radionuclídeo a ser calibrado e assim poder obter a sua atividade. É necessário que atividade do  $^3\text{H}$  esteja rastreada à rede metrológica nacional ou internacional com uma incerteza bem determinada para se obter um bom resultado.

Quando os componentes da amostra radioativa absorvem uma considerável quantidade energia (seja pelos fótons gerados pela excitação molecular do coquetel de cintilação ou simplesmente pelo decaimento), dá-se o nome de extinção (*Quenching*). A partir do valor da extinção, juntamente com o do Parâmetro Livre, é possível padronizar um elemento radioativo utilizando o método CIEMAT/NIST. (CRUZ, 2013; LOUREIRO, 2013)

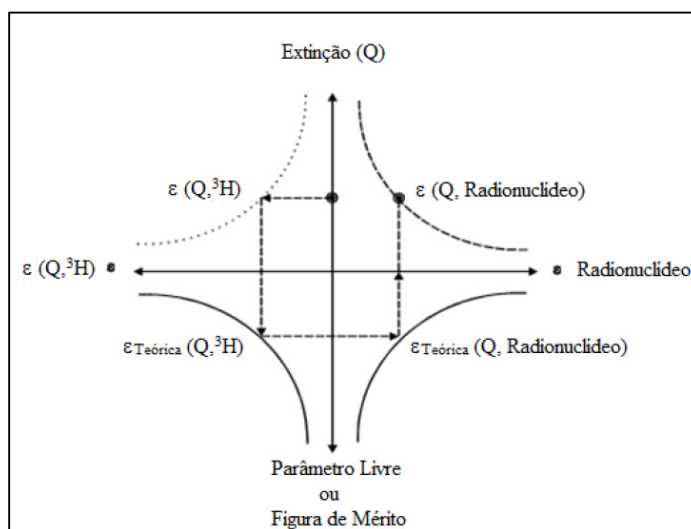


Figura 3.5 – Representação do método de calibração utilizando CIEMAT/NIST (CRUZ, 2013)

Com base em um conjunto de amostras de  $^3\text{H}$ , é possível experimentalmente, determinar uma curva de eficiência em oposição à extinção. Observando na figura 3.5, percebe-se também, a existência de uma curva teórica que relaciona Parâmetro Livre e a

eficiência do padrão  $^3\text{H}$ . Quando essas duas curvas são confrontadas, obtém-se uma nova curva de Parâmetro Livre versus extinção.

Os valores obtidos para a extinção são interpolados na curva de Parâmetro Livre em relação à extinção do  $^3\text{H}$ . Em contra partida, o valor encontrado para o Parâmetro Livre é interpolado na curva do Parâmetro Livre versus a eficiência do radionuclídeo. Com essas curvas e os valores obtidos, é possível a determinação da atividade da amostra do radionuclídeo medido.

Uma vantagem para a utilização deste método é com relação ao comportamento do sistema. Uma vez conhecido o resultado efetivo das várias medições realizadas com vários coquetéis originados de uma mesma solução, pode-se prever o comportamento para outro radionuclídeo qualquer. Para isso, as eficiências de detecção que foram obtidas com a solução padrão, são tomadas como referência.

### **3.6. Curva de eficiência**

Uma curva de eficiência em função da energia é construída utilizando-se fontes radioativas padrões de atividades e incertezas associadas bem conhecidas. Ela é utilizada para a determinação, por interpolação da curva, das eficiências das energias correspondentes às radiações emitidas por uma fonte radioativa que não foi utilizada para a construção dessa curva. Essas eficiências serão utilizadas para o cálculo da atividade dessa fonte bem como para as probabilidades de emissão de fótons gama ou X. . Matematicamente, como já foi visto no item 3.3.1.2, a eficiência é dada pela razão entre as taxas de radiação detectadas pelo sistema e a emitida pela fonte.

A curva de eficiência versus energia pode ser obtida através da equação 3.23, desde que se mantenha a mesma geometria de contagem e o mesmo sistema para detectar radiação.

$$\varepsilon = \frac{S}{t \cdot A \cdot K \cdot P_{\gamma}} \quad (3.23)$$

Onde:

S = área sob o pico de absorção de energia E

t = tempo vivo de contagem (s)

A = Atividade absoluta da fonte na data da medição (Bq)

K = Fator de decaimento da fonte padrão ( $e^{-0,693 \cdot t_0/T_{1/2}}$ )

$P_{\gamma}$  = Probabilidade de emissão de raio-X ou  $\gamma$  no fotopico selecionado.

### 3.7. Probabilidade de emissão de fótons ( $P_{x,\gamma}$ )

É a probabilidade de um decaimento radioativo ser seguido pela emissão de Raios-X ou  $\gamma$  de uma dada energia. Essa emissão é a liberação de energia excedente, que acontece sob a forma de radiação eletromagnética, para que o núcleo atinja o estado fundamental. (TAUHATA, 2001; MOREIRA, 2000)

O conhecimento da probabilidade de emissão dos Raios-X ( $P_x$ ) ou  $\gamma$  ( $P_{\gamma}$ ) é bastante relevante, uma vez que muitos elementos radioativos emissores de radiação gama são utilizados em diversas áreas do conhecimento. A justificativa para tal é que o valor da intensidade dos fótons, tem relação com o valor encontrado para a atividade do radionuclídeo.

O  $P_x$  e  $P_{\gamma}$  podem ser determinados de duas maneiras diferentes: uma relativa e outra absoluta. Na primeira forma, são consideradas todas as probabilidades de transições dos níveis excitados  $\beta$  e  $\gamma$  do esquema de decaimento do radionuclídeo. No segundo método é utilizado um sistema primário de medição, onde a atividade da amostra é determinada de forma direta, como por exemplo, o sistema de coincidência.

Desta maneira, devem ser levadas em consideração a eficiência e a área do fotopico de energia de interesse e a atividade do radionuclídeo. Assim, como pode ser observado na equação 3.24, é possível determinar a probabilidade de emissão de Raios-X ou  $\gamma$  por:

$$P_{x,\gamma} = \frac{S}{t \cdot K \cdot A \cdot \epsilon_{x,\gamma}} \quad (3.24)$$

Onde:

S = Área líquida do fotopico de absorção total de energia em questão, devidamente corrigido para decaimento, tempo morto, atenuação e geometria. ( $s^{-1}$ )

$\epsilon_{\gamma}$  = Eficiência do pico de absorção total da radiação, determinado através de curva de eficiência.

A = Atividade da fonte no momento da medição.

### 3.8. Radionuclídeos utilizados

Para este trabalho, foram selecionados três radionuclídeos:  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{123}\text{I}$  e  $^{153}\text{Sm}$ . A escolha destes elementos se baseou na ampla utilização na medicina nuclear. Todos os elementos possuem meias-vidas curtas e quando usados como radiofármacos é preciso que tenham as suas atividades muito bem determinadas, para otimizar a dose interna aplicada aos pacientes.

#### 3.8.1. $^{177}\text{Lu}$

O  $^{177}\text{Lu}$  é um elemento pertencente aos radioisótopos do grupo das terras raras e devido ao seu esquema de decaimento, fácil aquisição e disponibilidade, é muito utilizado na medicina nuclear. Especialmente no que tange a carcinomas de vários tipos, tais como: cólon, pulmão, ovário, próstata e ósseo. Sua meia-vida é curta, de apenas

6,647 dias e decai, por emissão beta, à três níveis excitados, tornando-se  $^{177}\text{Hf}$  após emissão de raios gama (como mostra a figura 3.6), sendo os principais de 113 keV e 208 keV, com 6,20 % e 10,38 %, respectivamente, suas probabilidades de emissão. (LNHB (a), 2016)

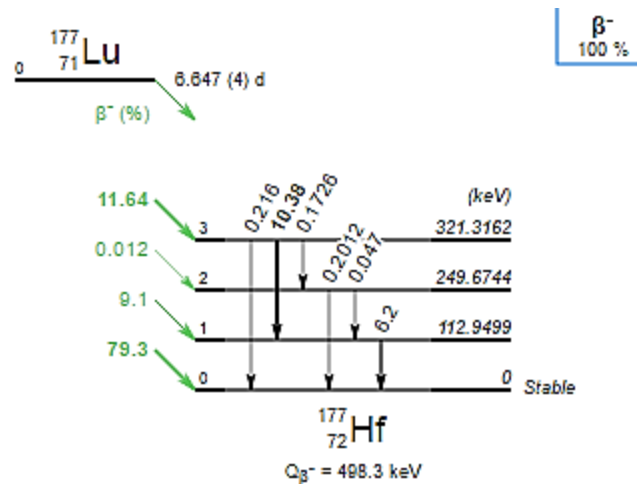


Figura 3.6 - Esquema de decaimento simplificado do  $^{177}\text{Lu}$  (LNHB,2105)

### 3.8.2. $^{123}\text{I}$

O  $^{123}\text{I}$  é também bastante utilizado nas clínicas de medicina nuclear, especialmente no que diz respeito à glândula tireóide. Ele possui uma meia-vida, de 13,21 horas, emitindo preferencialmente um raio gama de 159 keV, conforme pode ser observado pelo esquema de decaimento da figura 3.7.

Por ter uma meia-vida mais curta que os demais radioisótopos utilizados para diagnóstico de problemas na tireóide, ele é extremamente indicado, especialmente para exames em crianças. Sua boa qualidade de imagem viabiliza diagnósticos mais concisos e um tratamento mais precoce da glândula.

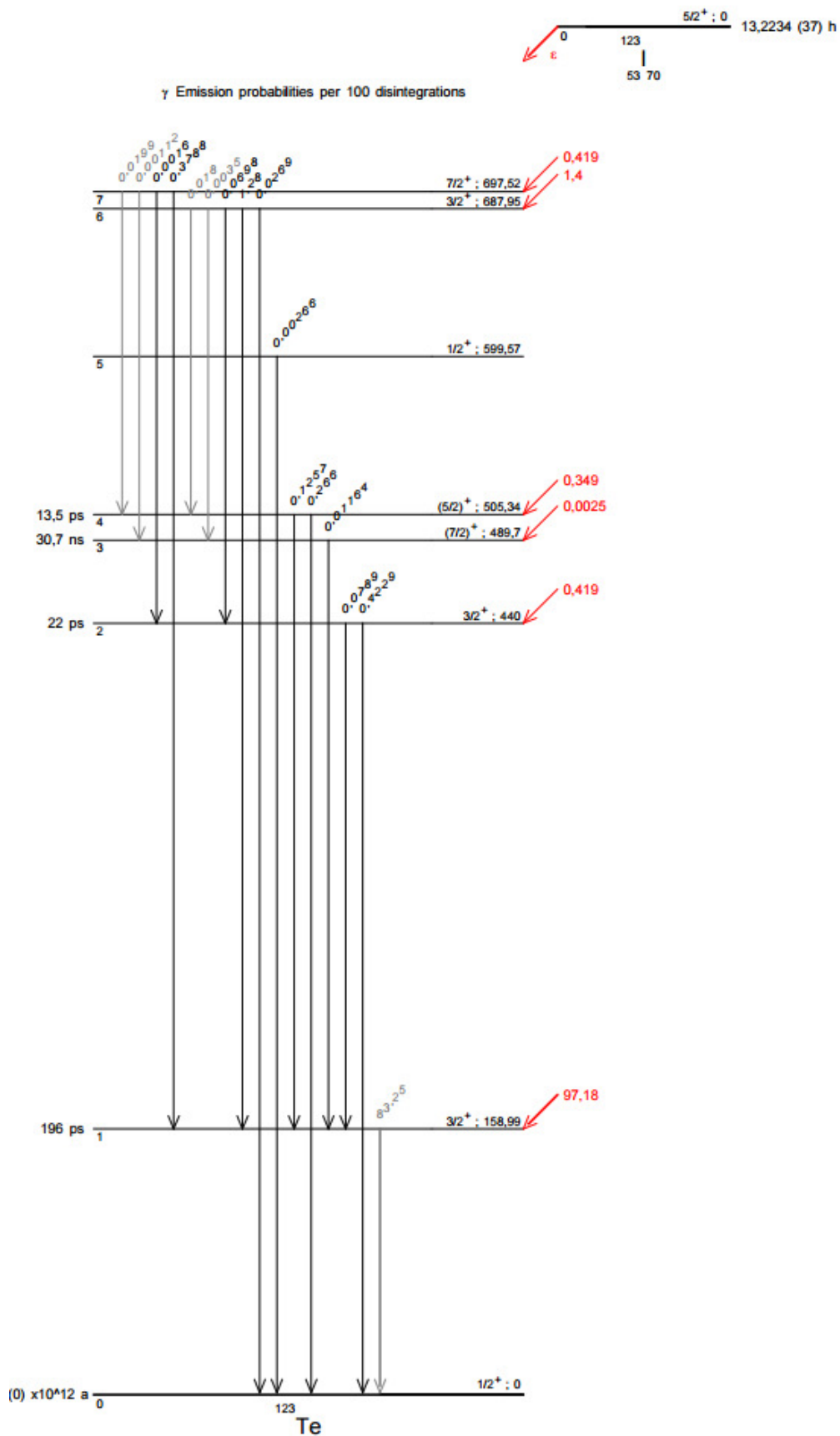


Figura 3.7 – Esquema de decaimento do  $^{123}\text{I}$  (LNHB (b), 2016)

O radioisótopo escolhido para este trabalho é, atualmente produzido a partir do gás  $^{124}\text{Xe}$  em um ciclotron. Ele é obtido através da irradiação com partículas carregadas positivamente (como prótons e partículas alfa) com alvos estáveis. Através da captura eletrônica, os núcleos instáveis por excesso de prótons decaem. (KOSKINAS, 2012)

### 3.8.3. $^{153}\text{Sm}$

Na forma de radiofármaco, este elemento é bastante utilizado para alívio de dores em caso de câncer nos ossos e no tratamento de inflamação nas articulações. Recentemente há estudos para a possibilidade de marcação de anticorpos monoclonais.

O  $^{153}\text{Sm}$  decai para o estado fundamental do  $^{153}\text{Eu}$  por decaimentos  $\beta^-$  e  $\gamma$ , cuja energia principal de decaimento vale 103 keV. A figura 3.8 apresenta o esquema de decaimento simplificado para o  $^{153}\text{Sm}$ . (LNHB (c), 2016)

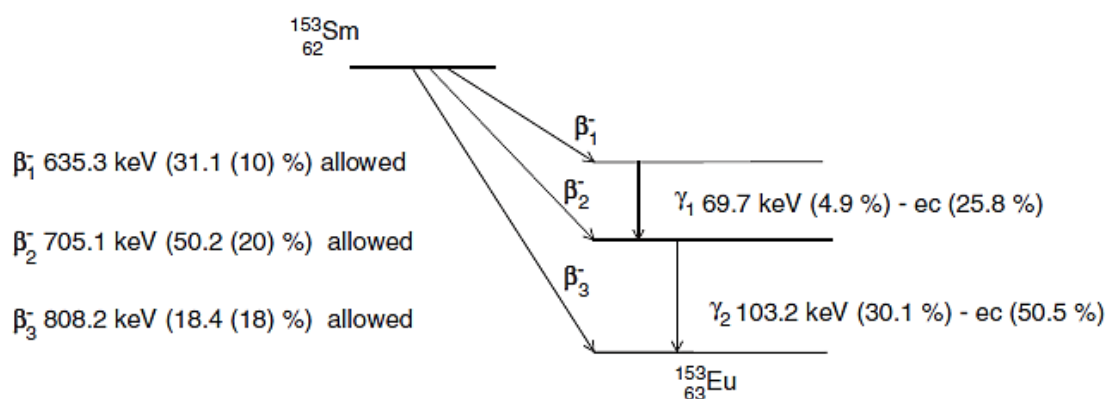


Figura 3.8 – Esquema simplificado de decaimento do  $^{153}\text{Sm}$  (LNHB,2015)

## Capítulo 4

# METODOLOGIA

### 4.1. Métodos de padronização de radionuclídeo

Como já foi descrito no capítulo 3, existem dois métodos de padronização de radionuclídeos: os absolutos (primários ou diretos) e os relativos (secundários ou indiretos). No primeiro tipo, é possível determinar o valor da grandeza atividade de forma direta, gerando um padrão. No segundo método é necessária a existência de um padrão, previamente medido por um método absoluto, para a comparação com o valor encontrado através desta técnica e podendo gerar também um padrão, porém de nível inferior em relação ao anterior na hierarquia da cadeia metrológica.

Neste trabalho foram utilizados os métodos de coincidência e anticoincidência como métodos absolutos de padronização. Também foram empregados o método de cintilação líquida CIEMAT/NIST e a espectrometria gama para identificação e quantificação das impurezas presentes nas amostras originais. Foram padronizados os radionuclídeos:  $^{123}\text{I}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{177}\text{Lu}$  utilizando ambos os métodos.

### 4.2. Preparação de fontes

Cada sistema de padronização/calibração de radionuclídeo utiliza um determinado tipo de fonte e geometria de contagem, portanto há um procedimento diferente para a confecção de cada uma delas. Neste trabalho foram utilizados dois tipos de geometria de fontes: sólidas em suportes de PVC e líquidas em frascos de vidro contendo coquetéis de cintilação.

Quando o radionuclídeo chega ao laboratório, geralmente com alta concentração de atividade (da ordem de MBq/g) ele é diluído com água destilada ou meio químico



adequado, até que se alcance a concentração de atividade necessária para a execução das medidas. Em seguida, através da técnica da pesagem diferencial (MERRIT, 1973) (utilizando a balança digital *METTLER TOLEDO* de modelo *MT-5*, apresentada na figura 4.1), são produzidas as fontes em geometrias diferentes, de acordo com o sistema da medição.



*Figura 4.1 – Balança digital METTLER TOLEDO (MT-5)*

#### **4.2.1. Fontes sólidas em PVC**

Esse tipo de geometria é preparado com um dispositivo conta-gotas chamado picnômetro de polietileno. É depositada uma determinada quantidade de gotas, que compõem a quantidade de atividade necessária para a medição, em um filme de poliestireno. Este material possui espessura de 0,05 mm e é fixado em um anel de PVC onde são registradas as identificações do radionuclídeo e o número da fonte. Os diâmetros externos e internos do anel medem respectivamente 25 mm e 4 mm, sendo sua espessura de 1 mm (OLIVEIRA, 2012; ARAÚJO, 2015). Após a secagem, as fontes são cobertas com o mesmo filme de poliestireno. As figuras 4.2 e 4.3 representam

respectivamente o esquema de confecção da fonte sólida e uma das fontes de  $^{57}\text{Co}$  utilizadas no trabalho.

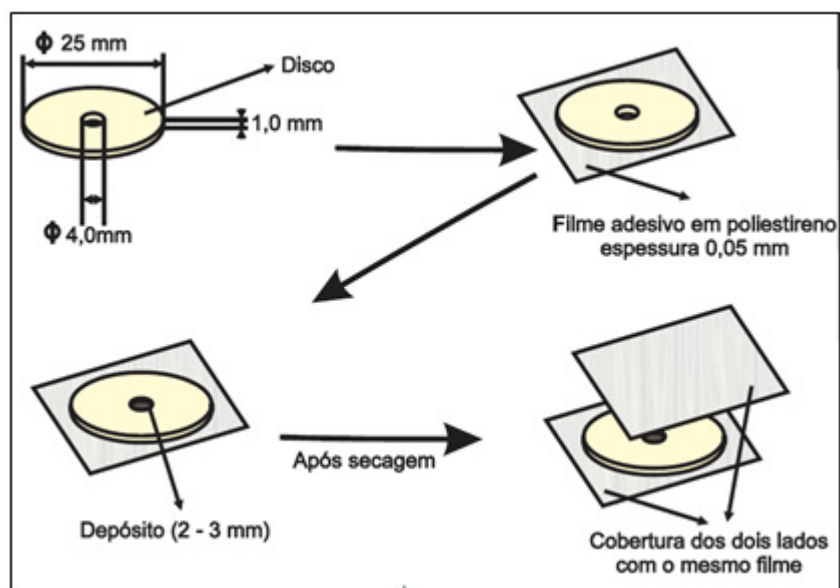


Figura 4.2– Esquema de confecção de fonte de PVC (OLIVEIRA, 2012; ARAÚJO, 2015)



Figura 4.3 – Fonte de PVC de  $^{57}\text{Co}$

Esta geometria foi utilizada para espectrometria de fótons com CdTe na determinação das intensidades de emissão de Raios-X característicos e gama dos radionuclídeos estudados. Para os radionuclídeos  $^{123}\text{I}$  e  $^{153}\text{Sm}$ , foram confeccionadas 6 fontes e para o  $^{177}\text{Lu}$  foram produzidas 3 fontes, conforme exposto na tabela 4.1.

Tabela 4.1 – Fontes confeccionadas para este trabalho

Radionuclídeo	Quantidade de fontes	Numeração
$^{123}\text{I}$	6	De 151S15 a 156S15
$^{153}\text{Sm}$	6	De 164S15 a 169S15
$^{177}\text{Lu}$	3	De 157S15 a 159S15

#### 4.2.2. Fontes de cintilação líquida

As fontes de cintilação líquida são produzidas a partir da mesma solução diluída que originou as fontes de PVC. Algumas gotas desta solução (quantidade necessária para a determinação da atividade) são adicionadas a 15 ml de coquetel cintilador comercial. Para este trabalho, foram escolhidos dois tipos do fabricante *PerkinElmer*: *Hi-Safe* e *Ultima Gold*.

As massas adicionadas ao coquetel cintilador foram determinadas por gravimetria, através de pesagem diferencial, utilizando o método do picnômetro. A figura 4.4 ilustra uma fonte de cintilação líquida.



Figura 4.4 – Frasco de vidro contendo a amostra de coquetel cintilador (OLIVEIRA, 2012)

### 4.3. Procedimento experimental

#### 4.3.1. Padronização pelo método de coincidência $4\pi\beta(\text{CL})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$

Este método absoluto de padronização possui dois detectores para detecção de duas radiações distintas: um para beta (elétrons de conversão, Auger ou Raios-X característicos) e outro para gama. Os eventos coincidentes beta-gama são monitorados por um circuito de coincidência com um tempo de resolução de coincidência de cerca de 1  $\mu\text{s}$ . No coquetel de cintilação são detectadas as partículas betas ou os elétrons de conversão interna ou Auger ou os Raios-X característicos. Os sinais luminosos produzidos pela interação dessas radiações alimentam as duas fotomultiplicadoras acopladas ao frasco de cintilação e vão originar pulsos elétricos que são processados na cadeia eletrônica associada produzindo uma contagem num determinado intervalo de tempo. O conjunto cintilador líquido e a eletrônica associada é denominado canal beta.

A contagem da radiação gama, detectada no cristal de NaI(Tl), é realizada, após seleção de sua energia no discriminador monocanal e os pulsos elétricos produzidos são processados na cadeia eletrônica associada. O conjunto cintilador e a eletrônica associada é denominado canal gama. Para registrar uma contagem de coincidência é necessário que os pulsos originários dos canais betas e gama cheguem simultaneamente no circuito de coincidência dentro do tempo de resolução fixado. Normalmente o pulso gama chega ao circuito de coincidência alguns  $\mu\text{s}$  antes do pulso beta e, portanto, um ajuste de retardo é necessário. Esse ajuste é auxiliado por um módulo eletrônico denominado conversor de tempo em amplitude (TAC). (GANDY, 1963; NASCIMENTO, 2014)

Para dar início à padronização da fonte radioativa, é preciso determinar preliminarmente alguns parâmetros para fixar as condições de contagem do sistema de medição que depende do radionuclídeo a ser medido. Esses parâmetros são: radiação de fundo, tempos mortos dos canais beta e gama, tempo de resolução, ajuste do retardo relativo beta-gama e a fixação das energias gama (janela gama) para a contagem no canal gama. A tabela 4.2 apresenta os valores das janelas utilizadas para cada radionuclídeo e as correspondentes intensidades de emissão (LNHB (d)).

*Tabela 4.2 – Janelas utilizadas para o método de coincidência e anticoincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$*

<b>Radionuclídeo</b>	<b>Janela ao redor do pico fotoelétrico(keV)</b>	<b>Intensidade (%)</b>
$^{123}\text{I}$	158	83
$^{153}\text{Sm}$	103	29
$^{177}\text{Lu}$	208 e (113+208)	10

Para a aquisição e análise dos dados foi utilizado um *software* desenvolvido exclusivamente para o método de coincidência, chamado *COIN*. Para dar início ao seu funcionamento, os parâmetros determinados anteriormente são introduzidos como dados de entrada que são: data de referência, meia-vida, radiação de fundo (BG), tempos mortos, tempo de resolução, número de ciclo de contagem e duração da contagem.

A figura 4.5 ilustra o do sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  através de diagrama de blocos.

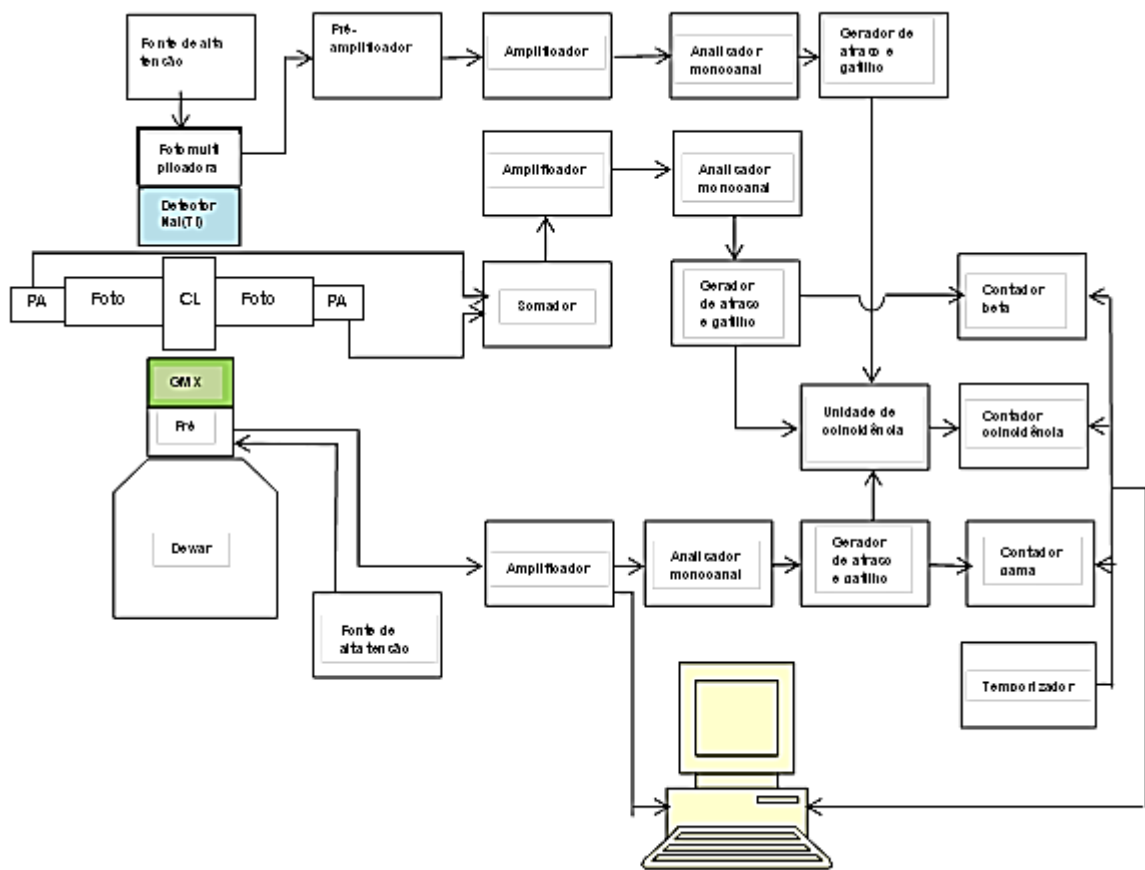


Figura 4.5 -Diagrama de blocos do Sistema de Coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$

#### 4.3.2. Padronização pelo método de anticoincidência $4\pi\beta(\text{CL})\text{-}\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$

Este método absoluto de determinação da grandeza Atividade é bastante semelhante ao do sistema de Coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ . A taxa de contagem do canal de coincidência é obtida através da subtração entre a contagem gama total e a contagem gama não correlacionada à emissão beta. (BOUCHARD, 2002)

A tomada de dados também foi bastante semelhante ao que foi descrito no item 4.3.1. Foram estabelecidas as mesmas “janelas” gama de energia para os radionuclídeos medidos neste trabalho, apresentadas na tabela 4.2. O valor de discriminação no analisador monoanal do canal beta foi variado desde 0,1 V até alcançar 1,0 V, num

passo de 0,1 V. Foram realizados 3 conjuntos de 5 medições com 60 segundos cada uma.

Para a medição do  $^{123}\text{I}$  (e para o  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{177}\text{Lu}$ ), após os três conjuntos iniciais de medidas, as tomadas de dados subsequentes foram únicas para cada valor de tensão do potenciômetro. Entretanto cada uma durou 5 minutos (300 segundos). A figura 4.6 ilustra o diagrama de blocos do sistema de calibração anticoincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ .

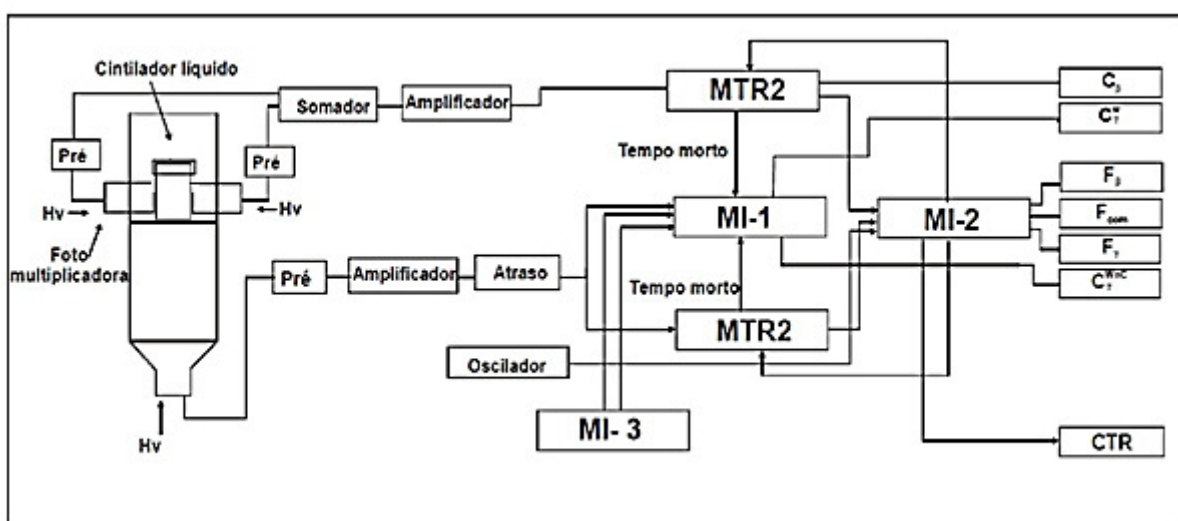


Figura 4.6 – Diagrama de blocos do Sistema de anticoincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$

#### 4.3.3. Padronização pelo método de cintilação líquida CIEMAT/NIST

Este método indireto tem a figura de mérito, ou parâmetro livre, como função do cálculo teórico da eficiência de contagem do padrão  $^3\text{H}$  para um coquetel cintilador. Essa eficiência é calculada através de programas de computador que utilizam como linguagem de programação o FORTRAN.

O programa EFFY é responsável por criar curvas de eficiência teóricas para os emissores betas. Os softwares CEGA e CEGA 2 são algoritmos que criam curvas de

eficiência teóricas para os emissores de captura eletrônica. O programa EBEGA é responsável por gerar as curvas de eficiência para as emissões de radiação beta e gama e por último, o programa LSCP calcula a eficiência do detector e a atividade das amostras dos radionuclídeos.

O sistema foi montado com duas fotomultiplicadoras opostas diametralmente, cujo modelo é o 9635QB da fabricante THORN-EMI. Para a alimentação, foi utilizada uma fonte de alta tensão, modelo NV – 32A, da HARSHAW, com 1500V.

#### **4.3.4. Espectrometria gama com CdTe**

##### **4.3.4.1. O detector CdTe**

Na metrologia de radionuclídeos a espectrometria é bastante utilizada para determinação da atividade de um radionuclídeo e na identificação e quantificação de impurezas radionuclídicas que são feitas a partir da análise de fotopicos do espectro. Para espectrometria de ftons de baixa energia, abaixo de 100 keV, neste trabalho foi utilizado o detector de Telureto de Cádmio (CdTe) modelo XR-100T-CDTE *X-ray and gamma-ray detector & Preamplifier*, da marca *Amptek*, acoplado a um processador de pulso modelo PX5 *Digital Pulse Processor and Power Supply*, da mesma marca.

Este equipamento, capaz de fazer a detecção de Raios-X e gama, é termoeletricamente resfriado, dispensando o uso de nitrogênio líquido. Um esquema representando este detector, juntamente com o sistema de resfriamento, pode ser visto na figura 4.7. O detector de CdTe é capaz de detectar energias de poucos à centenas de keV, com uma eficiência que varia de 10 a 100. O processamento de aquisição e análise



da radiação detectada é feita através de um Processador de pulso digital PX5, conforme mostra a figura 4.8. (AMPTEK, 2016)

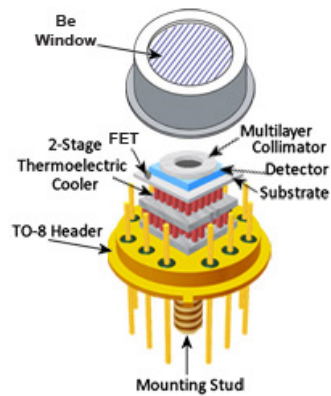


Figura 4.7 – Esquema do detector de CdTe



Figura 4.8 – Detector XR-100 e processador de pulso digital PX-5

O sistema do espectrômetro é condicionado em uma caixa de alumínio de dimensões 7,6 x 4,4 x 2,9 cm e na sua configuração padrão, duas conexões são requeridas: +5 VDC e comunicações (USB, RS232 ou Ethernet). O detector de CdTe possui uma área ativa de 25 mm<sup>2</sup>, com uma espessura de 1 mm e uma janela de Berílio de 100 µm. O ganho varia entre 0,84 e 127,5. A temperatura do resfriador termoelétrico utilizado foi de 100 K e a alta tensão aplicada no detector foi de 700V. A resolução de energia (FWHM - *Full Width at Half Maximum*), baseada no pico de 122 keV do <sup>57</sup>Co, é de 850 eV, segundo o manual de operação do fabricante.

Para realizar a espectrometria foi utilizado um suporte em PVC para as fontes, a fim de fixar a geometria de contagem, que são confeccionadas do mesmo material. Com o intuito de se adaptar à melhor geometria de contagem, o detector foi encapsulado em uma caixa em PVC, assim como pode ser visto na figura 4.9. Os dados foram coletados e a análise destes foi feita através de espectros, gerados por um *software* da empresa fabricante do detector, a *AMPTEK*.



*Figura 4.9 – Detector com fonte em suporte de PVC*

#### 4.3.4.2. O uso do *Rise Time Discriminator* (RTD)

Este método vem sendo utilizado com o propósito de melhorar o formato do espectro (mais precisamente do fotopico em análise), utilizando a informação do tempo de subida (*risetime*) da gaussiana. Todos os pulsos com este tempo de subida maior que determinados valores de limiares de discriminação (*threshold*), são rejeitados. Assim, todos os pulsos que contribuam para a cauda do fotopico, são descartados. Ou seja, os pulsos são eliminados na região de baixa energia do pico.

O recurso RTD fornece uma melhor resolução, porém esse método acaba por diminuir a sensibilidade, já que muitas contagens são descartadas. A utilização deste recurso pode ser observada no espectro da figura 4.10 em comparação com o da figura 4.11. Na figura 4.10, o pico fotoelétrico de 122 keV do espectro de <sup>57</sup>Co obtido sem a aplicação do RTD apresentou uma resolução de 1200 eV enquanto que na figura 4.11, com o uso deste recurso houve uma melhoria de resolução para 780 eV.

Neste trabalho foi aplicado um RTD *Threshold* de 40,03 %, dentro de um limite que varia entre 0 e 49,9 % e um RTD *Sensitivity* de 300 %, dentro de uma possibilidade que varia entre 0 e 398 %.

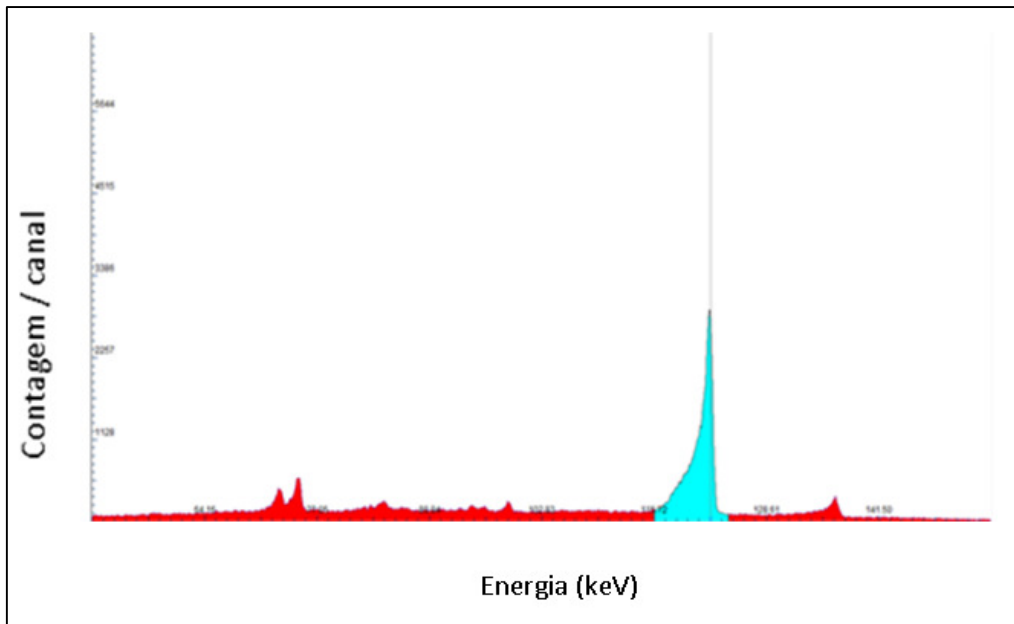


Figura 4.10 – Espectro de  $^{57}\text{Co}$  sem a utilização de RTD

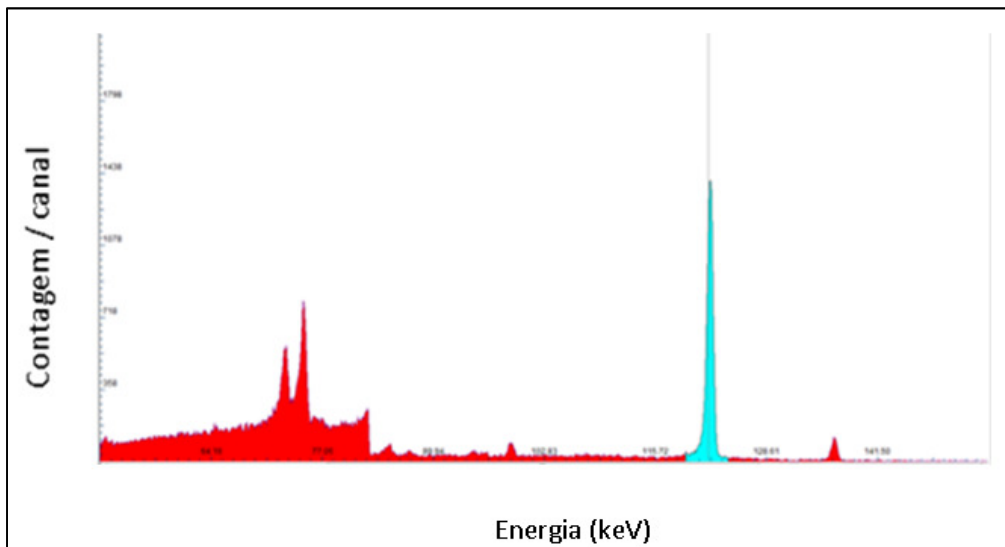


Figura 4.11 – Espectro de  $^{57}\text{Co}$  com a utilização de RTD

#### 4.3.4.3. Pico Escape

Os detectores de CdTe são bastante sensíveis aos efeitos do pico escape. A produção dos Raios-X secundários, devido à interação com os elementos que compõem o detector (Cd e Te), escapam e com isso reduzem a energia medida. Fato este justificado por três propriedades intrínsecas do Telúrio e do Cádmio. A primeira se deve ao fato de tanto para o Te quanto para o Cd a proporção de elementos que decaíam com emissão de Raios-X é de aproximadamente 85% (REDUS, 2009). A segunda justificativa é que os dois elementos do detector produzem picos do tipo  $K_{\alpha}$  e  $K_{\beta}$  e por tanto, cada pico de energia primário, produz quatro pico escapes.

A terceira razão é que as energias dos Raios-X característicos para o  $K_{\alpha}$  e  $K_{\beta}$  do Cd são de respectivamente 23,2 keV e 26,1 keV, enquanto para o Te as energias correspondem a 27,5 keV ( $K_{\alpha}$ ) e 31,0 keV ( $K_{\beta}$ ). Como o alcance deles é maior, são bastante relevantes quando se trata de energias mais altas. A figura 4.12 apresenta um espectro do  $^{241}\text{Am}$  com a presença dos quatro pico escapes gerados pelo Cd e Te. As regiões destacadas representam os pico escapes e o fotopico de 59,5 keV do  $^{241}\text{Am}$ , respectivamente.

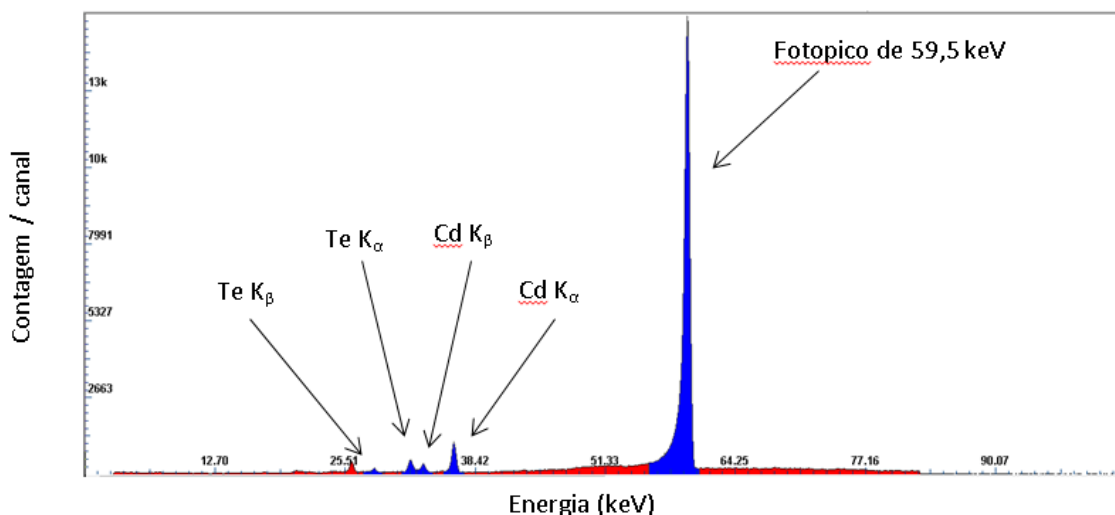


Figura 4.12 – Espectro de uma fonte de  $^{241}\text{Am}$  com a presença de pico escape

Os quatro picos escapes que aparecem na figura 4.12 surgem por conta da diferença entre as energias do fotopico de 59,5 keV do  $^{241}\text{Am}$  e as energias de escape do Te e do Cd. Assim, o pico  $\text{K}_\beta$  do Te no espectro, é o resultado da subtração entre a energia do fotopico (59,5 keV) e a energia de escape de 31,0 keV. Então a área líquida do pico de 59,5 keV deve ser somada à área dos picos escapes, para determinar a área correta deste fotopico.

O máximo de correção para os fótons incidentes pouco acima da margem de 26,7 keV da camada K do Cd é de 15% para  $\text{K}_\alpha$  e 3% para  $\text{K}_\beta$ . Para energias acima de 100 keV, o rendimento se aproxima de 5% e 1,5 % para os  $\text{K}_\alpha$  e  $\text{K}_\beta$  do Cd e 1,5% e 0,4% para os  $\text{K}_\alpha$  e  $\text{K}_\beta$  do Te (REDUS, 2009).

Uma curva experimental, apresentada na Figura 4.13, para verificar esse efeito foi obtida utilizando fontes radioativas de  $^{210}\text{Pb}$  (46,539 keV),  $^{241}\text{Am}$  (59,54 keV),  $^{133}\text{Ba}$  (80,89 keV) e  $^{57}\text{Co}$  (122,06 keV), Nesta curva o eixo vertical representa a razão entre a soma das áreas dos quatro picos de escape distintos e a área do fotopico da energia incidente.

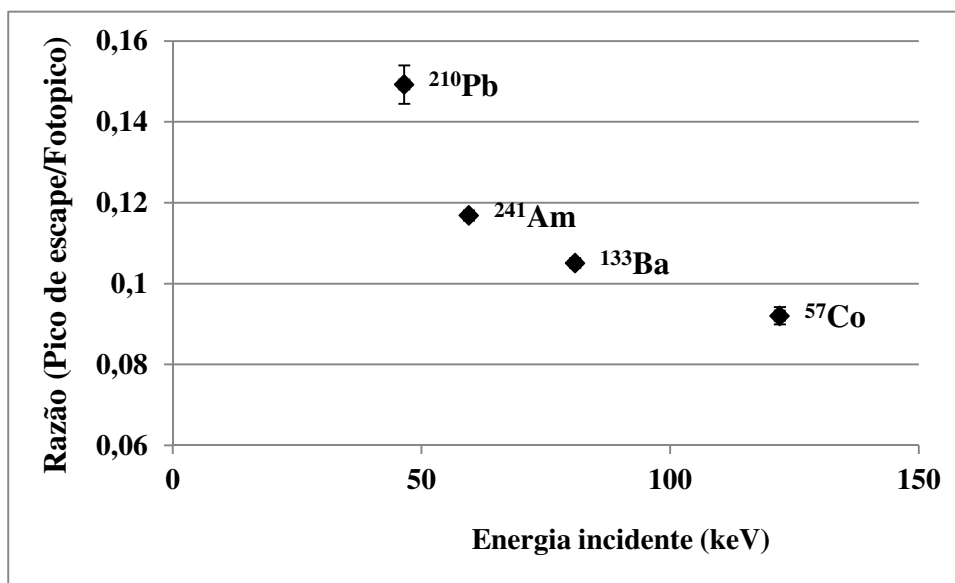


Figura 4.13 - Razão entre a soma das áreas dos 4 picos de escape e a área do fotopico da energia incidente.

#### 4.3.4.4. Curva de eficiência em função de energia

Neste método, com os valores das contagens dos fotopicos selecionados nos espectros, é possível determinar as eficiências através de uma curva que relaciona esta grandeza com a energia. Para este trabalho, foram construídas curvas de eficiência para dois detectores: HPGe e o CdTe.

Para que a curva de eficiência seja elaborada, é preciso que se conheça o radionuclídeo, bem como informações sobre ele tais como energias, suas intensidades de emissão e incertezas, atividade, data de referência e meia-vida. É preciso também ter

conhecimento de dados contidos nos espectros como as áreas dos picos selecionados, data de medição e tempo de contagem.

Algumas correções se fazem necessárias devido às várias atenuações que os fótons sofrem ao longo do caminho até o detector. Essas atenuações se devem principalmente ao material de poliestireno que cobre a fonte, a janela de Be do detector, ao espaço entre a fonte e o detector (ar), a camada morta e o contato de Platina. Os valores utilizados para estas correções estão disponibilizados pelo NIST (*National Institute of Standards and Technology*). (NIST, 2016) Outra correção importante que deve ser levado em conta é a correção de escape dos picos que são produzidos pelos Raios-X secundários no detector pela interação da radiação incidente com Cd ou Te, como já foi escrito em 4.3.4.3.

Na determinação da curva de eficiência do HPGe foram utilizados os radionuclídeos:  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  e  $^{210}\text{Pb}$ . Posteriormente, para o CdTe foram incluídos outros radionuclídeos como  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{106}\text{Ho}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  e  $^{152}\text{Eu}$  e retirados o  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{210}\text{Pb}$ .

#### **4.3.4.5. O software COLEGRAM**

Como foi dito no item 4.3.4.4 para o cálculo da curva de eficiência, um dos parâmetros necessários é a área líquida do fotopico do espectro originado. O detector de CdTe não possui resolução suficiente para separar energias muito próximas originando fotopicos superpostos, dificultando o cálculo das respectivas áreas individuais. Esta análise estava sendo feita de forma manual, através das equações 4.1 e 4.2, o que acarretava aumento das incertezas na determinação do resultado final.

$$A_L = 2 \cdot (A_B - B_G) \quad (4.1)$$



Sendo 
$$B_G = (c_f - c_i) \cdot ctg_f \quad (4.2)$$

$A_L$ : Área líquida

$A_B$ : Área bruta

$B_G$ : Background (radiação de fundo)

$c_f$ : Canal final

$c_i$ : Canal inicial

$ctg_f$ : Contagem final

Com o intuito de melhorar o resultado obtido na curva de eficiência, foi utilizado o *software COLEGRAM* (LNHB, 2016) para realizar estas separações, ou deconvoluções, para minimizar as incertezas no cálculo da área dos fotopicos individuais. Este programa tem o propósito de processar espectros experimentais complexos para descrever as características individuais e derivar a área individual de cada pico ou forma de interesse.

Antes da utilização do *COLEGRAM*, é necessária a instalação de um programa auxiliar chamado *Specon 2000* que se encarrega de realizar a conversão de arquivos para a extensão lida pelo *COLEGRAM*. Neste caso, o espectro foi salvo na extensão *.AS2* e o *Specon* converteu em *.CHN*, como pode ser observado na figura 4.14.

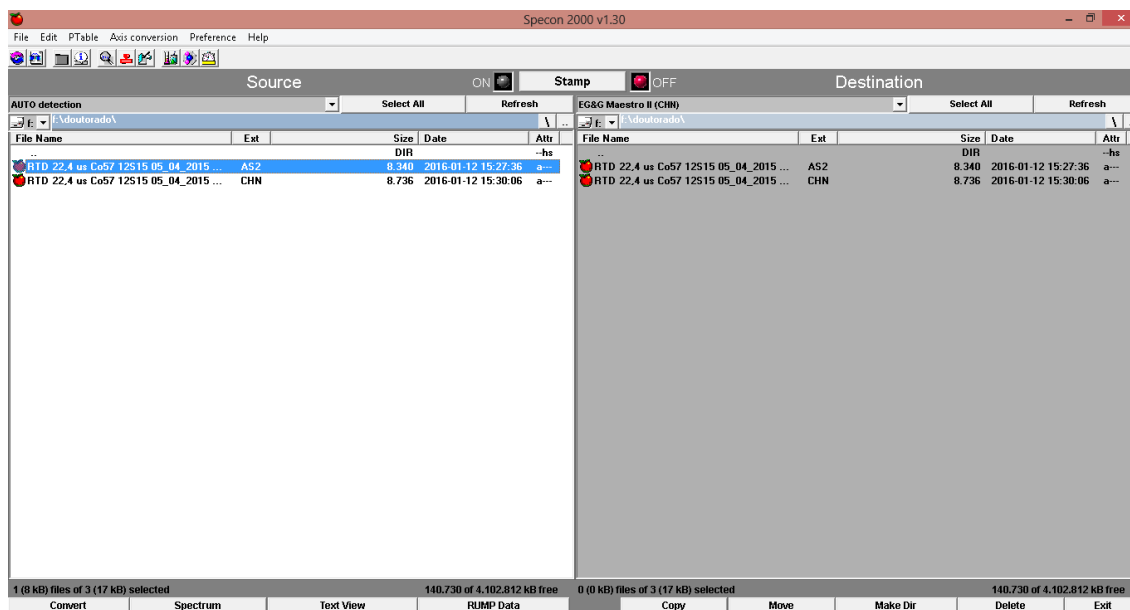


Figura 4.14 – Interface do Specon 2000

Ao abrir o espectro já convertido no *COLEGRAM*, antes de qualquer movimentação, é necessária uma calibração do espectro para que os picos apresentados estejam com as energias correspondentes às do radionuclídeo em questão. Para isso, é preciso inserir dois valores, calculados a partir de dois pares formados por canal e energia.

Com o espectro devidamente calibrado, escolhe-se o pico de energia desejado e, para determinar a área líquida do pico, é necessário escolher uma distribuição que melhor se ajusta dentre as opções oferecidas. Fixam-se os valores da largura do pico (FWHM) e da contagem do canal do pico e o programa faz o ajuste, utilizando o método do Chi-quadrado. A figura 4.15 apresenta a interface deste software em um momento de ajuste de uma das fontes que foram utilizadas na construção da curva de eficiência. Nesta figura podem-se observar os fotopicos dos Raios-X característicos  $K_{\alpha}$  e  $K_{\beta}$  do  $^{55}\text{Fe}$ . Para efetivamente determinar a contagem líquida de cada fotopico integrante de um multipletto, é necessário que se calculem as devidas áreas proporcionais, relacionadas ao espectro obtido diretamente do detector. Sendo assim, de

posse dos valores obtidos para a área após os ajustes no *COLEGRAM*, utilizou a equação 4.3 para o cálculo da área líquida utilizada para cálculo da eficiência de cada pico de energia.

$$A_{MCA} = \frac{A_1 \times A_2}{S} \quad (4.3)$$

Onde:

$A_{MCA}$  = Área do fotopico no espectro gerado pelo detector

$A_1$  = Área de cada fotopico obtido através dos ajustes no *COLEGRAM*;

$A_2$  = Área da região de interesse marcada no espectro oriundo do detector;

$S$  = Soma das áreas de cada pico de energia obtidas no *COLEGRAM*

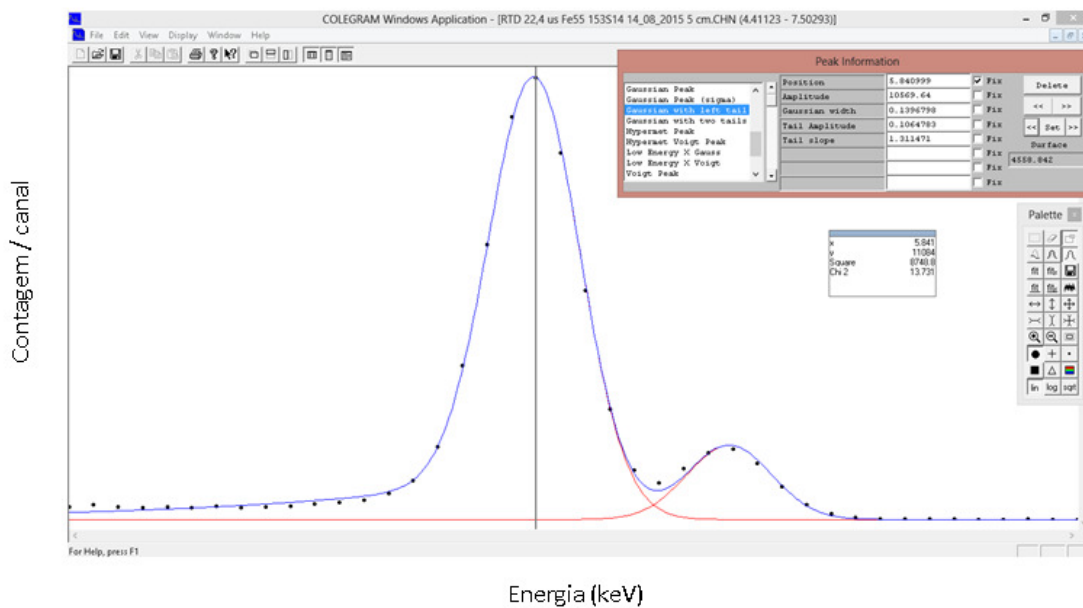


Figura 4.15 – Interface do *COLEGRAM* no ajuste de uma fonte de  $^{55}\text{Fe}$

## Capítulo 5

# RESULTADOS E DISCUSSÕES

### 5.1. Padronização dos radionuclídeos

As soluções radioativas utilizadas para a preparação das fontes radioativas neste trabalho, para obtenção da curva de eficiência versus energia do detector de CdTe, foram previamente padronizadas por métodos absolutos disponíveis nos laboratórios do LNMRI/IRD. Essas padronizações estão rastreadas ao Sistema Internacional de Referência (SIR/BIPM) através da participação do LNMRI em comparações chaves internacionais. (BIPM, 2016)

As soluções radioativas de  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{123}\text{I}$  e  $^{153}\text{Sm}$  foram padronizadas por métodos absolutos de coincidência/anticoincidência e cintilação líquida CIEMAT/NIST. Assim, conhecendo-se as massas depositadas nos suportes de PVC das fontes radioativas de  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{123}\text{I}$  e  $^{153}\text{Sm}$  determina-se a atividade de cada fonte preparada. Com estes valores e interpolando-se as eficiências das energias do radionuclídeo de interesse, foi possível determinar as probabilidades de emissão dos Raios-X e gama. Os resultados encontrados para cada radionuclídeo serão relatados nas subseções a seguir.

A resolução em energia do detector de CdTe, para várias energias, foi comparada com a de um HPGe planar como mostrado na figura 5.1. Os dados experimentais mostraram que o FWHM do HPGe é maior que o do CdTe até cerca de 80 keV. A partir dessa energia o FWHM do HPGe torna-se melhor comparado com o do CdTe. A figura 5.2 mostra a boa linearidade do CdTe em termos de canal versus energia.

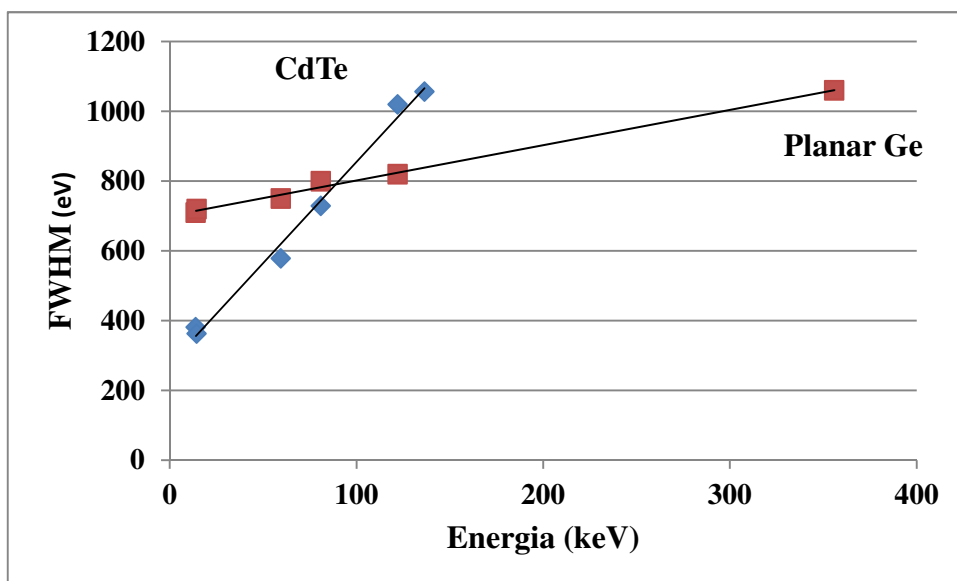


Figura 5.1 - Resolução em energia (FWHM) dos detectores de HPGe e CdTe.

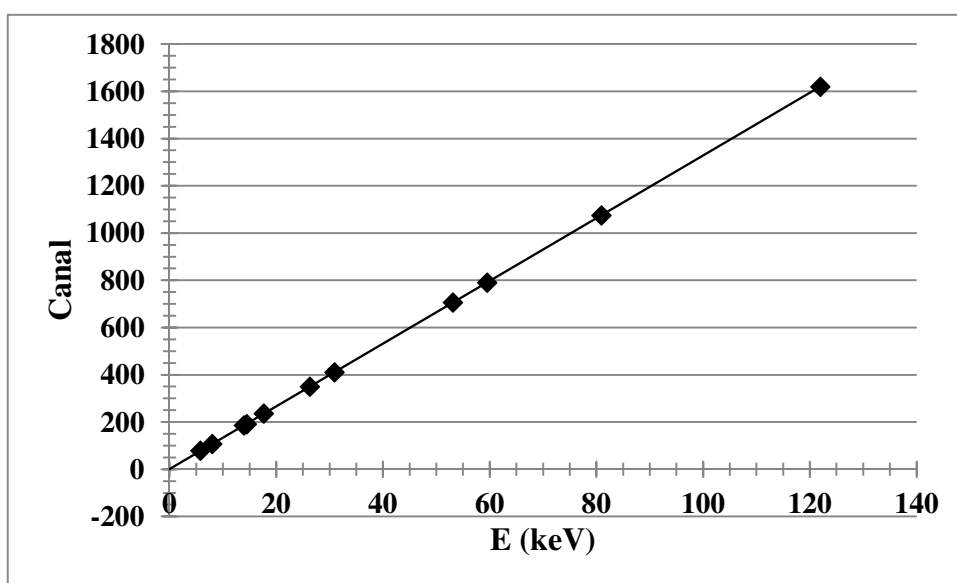


Figura 5.2 - Calibração do CdTe em canal versus energia.

As fontes padrões usadas na determinação da curva de eficiência versus energia apresentaram os seguintes dados, conforme a tabela 5.1.

*Tabela 5.1 - Dados das fontes padrões usadas na determinação da curva de eficiência versus energia do detector de CdTe.*

<b>Radionuclídeo</b>	<b>Conc. de atividade (kBq) na data de referência</b>	<b>Incerteza padrão (%)</b>	<b>Energia (keV)</b>	<b>Probabilidade de emissão (X,<math>\gamma</math>)</b>
<sup>241</sup> Am	5,984	0,65	26,3446	0,0231
			59,5409	0,3592
<sup>133</sup> Ba	4,938	0,65	30,625	0,340
			30,973	0,628
			35,053	0,182
			35,900	0,046
<sup>57</sup> Co	3,456	0,37	6,3995	0,500
			7,0832	0,071
			14,41295	0,0915
			122,06065	0,8551
<sup>152</sup> Eu	3,874	0,70	136,47356	0,1071
			39,5229	0,208
			40,1186	0,377
			45,477	0,1178
<sup>166m</sup> Ho	1,329	0,74	46,697	0,0304
			121,7817	0,2841
			7,785	0,208
			48,2211	0,108
<sup>55</sup> Fe	0,445	1,4	49,1277	0,192
			55,739	0,0624
			57,326	0,0162
			80,5725	0,1266
<sup>65</sup> Zn	5,181	0,80	5,89508	0,2502
			6,5128	0,0340
<sup>54</sup> Mn	14,410	0,80	8,0411	0,3467
			8,9412	0,0482
<sup>109</sup> Cd	0,697	0,75	5,412	0,227
<sup>210</sup> Pb	0,975	0,75	5,947	0,0305
			88,0336	0,03626
			46,539	0,04252

### 5.1.1. Curva de eficiência

Este método consiste em calcular o valor da eficiência para a energia do fotopico correspondente de um radionuclídeo específico e, a partir dos resultados obtidos, traçar a curva de eficiência do detector. Para tal, é necessário ter conhecimento da meia-vida,

atividade, probabilidade de emissão e suas incertezas, além as datas de emissão e referência do elemento radioativo de trabalho. Ademais destas informações, é fundamental a determinação correta da área do fotopico das energias do radionuclídeo. Para a demarcação destas áreas, foram utilizados dois softwares: o da *AMPTEK*, para determinação de áreas de picos únicos e, para os casos dos multipletos, utilizou-se o programa *COLLEGRAM*.

Para fins de comparação entre os detectores de HPGe e Telureto de Cádmiio, foram construídas duas curvas de eficiência, uma para cada detector. A princípio, os radionuclídeos escolhidos para criação da curva do HPGe, foram  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ . Posteriormente, foram adicionados os elementos  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{106}\text{Ho}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  e retirados o  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{210}\text{Pb}$ , para que fosse elaborada a curva de eficiência do CdTe. As curvas obtidas estão apresentadas nas figuras 5.3 e 5.4. A curva do CdTe pode ser comparada com a da figura 5.5, obtida por simulação, apresentada no manual do fabricante. A figura 5.3 está apresentado em escala log x linear e o ajuste do gráfico foi feito utilizando uma curva polinomial de grau 2. Já a figura 5.4, que está em escala log x log, foi ajustada com duas curvas polinomiais de grau 2 diferentes, uma vez que não se conseguiu realizar o ajuste de todo o gráfico com uma única curva. Assim, a curva experimental foi dividida em duas regiões: a primeira de 5 a 20 keV e a segunda de 20 a 140 keV. As barras de incerteza se referem a uma incerteza padrão, isto é, fator de abrangência  $k=1$ .

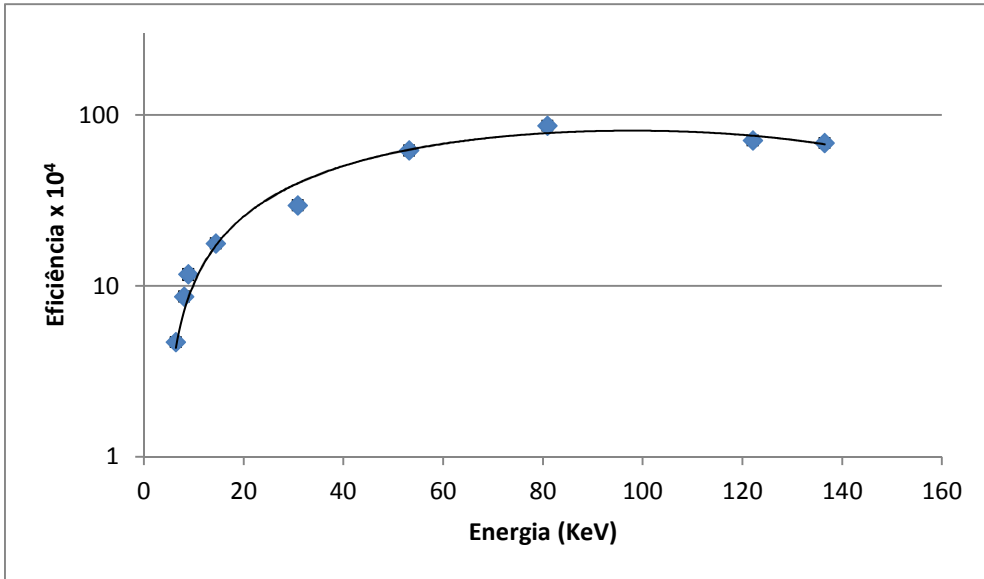


Figura 5.3 – Curva de eficiência do detector de HPGe

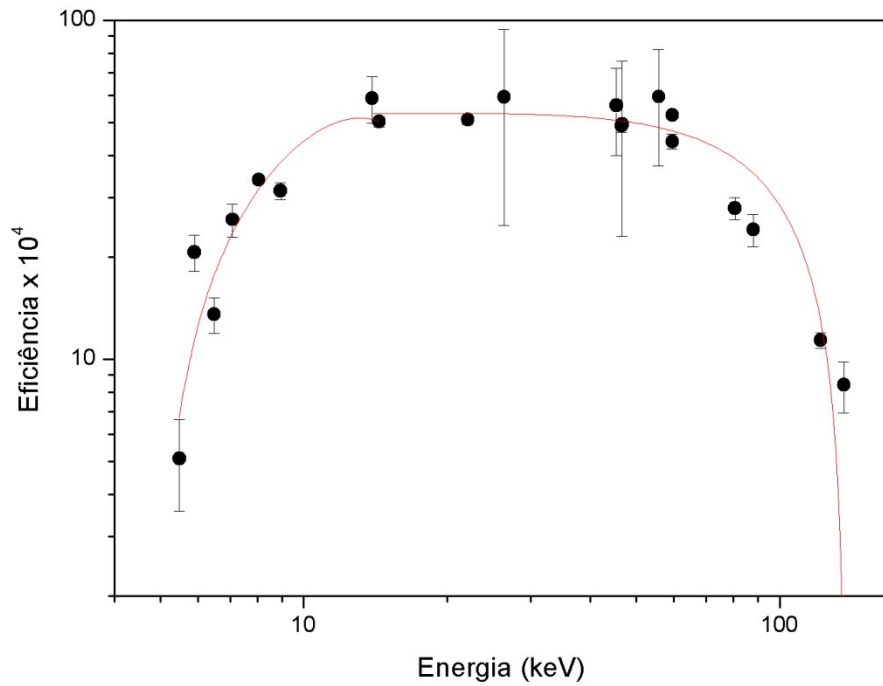


Figura 5.4 – Curva de eficiência do detector do CdTe



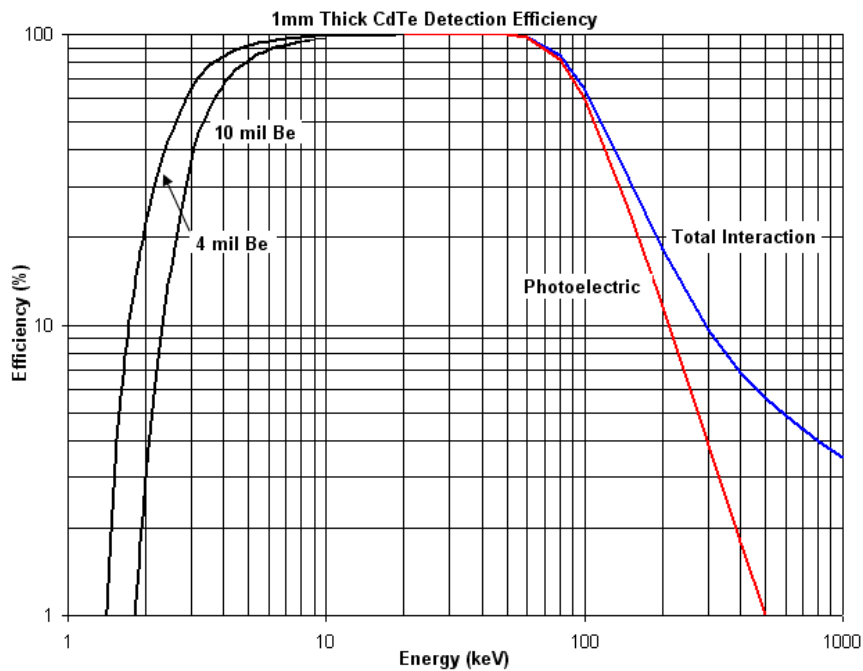


Figura 5.5 – Curva de eficiência fornecida pelo fabricante do detector de CdTe

Na curva de eficiência determinada experimentalmente pode-se observar que não foram utilizadas as energias de Raios-X da camada L. Isso se deve ao fato de o detector de CdTe ter resolução pobre nesta faixa de energia e mesmo com a utilização do COLEGRAM, os resultados obtidos não foram bons.

Alguns radionuclídeos possuem meia-vida extremamente curta e por esta razão, foram necessárias correções durante a contagem, além da correção natural do decaimento. Os elementos que passaram por esta correção foram o  $^{153}\text{Sm}$ , com meia-vida de 1,92855 dias e o  $^{123}\text{I}$  com 13,2234 horas.

### 5.1.2. $^{177}\text{Lu}$

Em procedimentos de terapia na medicina nuclear, radionuclídeos que decaem emitindo radiação beta de alta energia combinada com a emissão de radiação gama de baixa energia (que varia de 100 a 250 keV) são adequados para controlar a

biodistribuição do radiofármaco administrado ao paciente, utilizando uma gama-câmara. Nessa categoria estão  $^{153}\text{Sm}$ ,  $^{186}\text{Re}$ ,  $^{188}\text{Re}$  e mais recentemente  $^{177}\text{Lu}$ . Este radionuclídeo pode ser produzido num reator nuclear através de reações diretas  $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$  e  $^{176}\text{Yb}(n,\gamma)^{177}\text{Yb}$ , ( $\beta^-$ ),  $^{177}\text{Lu}$ . O último processo é mais vantajoso porque proporciona uma atividade específica mais elevada sem a presença de  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  de meia-vida longa (160,4 d) como impureza (LNHB(e), 2016).

O  $^{177}\text{Lu}$  teve sua atividade determinada por dois sistemas: coincidência e anticoincidência. Como já foi descrito nos capítulos 3 e 4, além de estarem disponíveis amplamente na literatura, estas metodologias utilizam a técnica da extrapolação de uma curva de eficiência para a determinação da atividade de um radionuclídeo. No sistema de coincidência, para obter a curva de extrapolação, a variação da eficiência beta foi feita através da discriminação eletrônica no canal beta. Desta maneira aumentando-se o nível de discriminação sucessivamente a eficiência beta correspondente diminui, possibilitando a obtenção diversos dados experimentais para a curva de extrapolação. Cada ponto experimental da curva de extrapolação representa a média aritmética de 5 medidas de 300 s. A figura 5.6 ilustra as curvas de eficiência beta em diferentes janelas gama obtidas a partir dos dados experimentais oriundos das medições de todas as fontes preparadas para a contagem em coincidência e anticoincidência. Os dados obtidos foram ajustados pelo método de mínimos quadrados de regressão não linear usando o algoritmo de Levenberg-Marquardt (SILVA, 2016).

As concentrações de atividade determinadas foram  $(13,320 \pm 0,077)$  e  $(13,317 \pm 0,081)$  kBq/g, respectivamente para as janelas gamas de 113 e 208 keV, na data de referência de 05/10/2015 12h00 hora local. As incertezas se referem a uma incerteza padrão combinada (fator de abrangência  $k=1$ ).

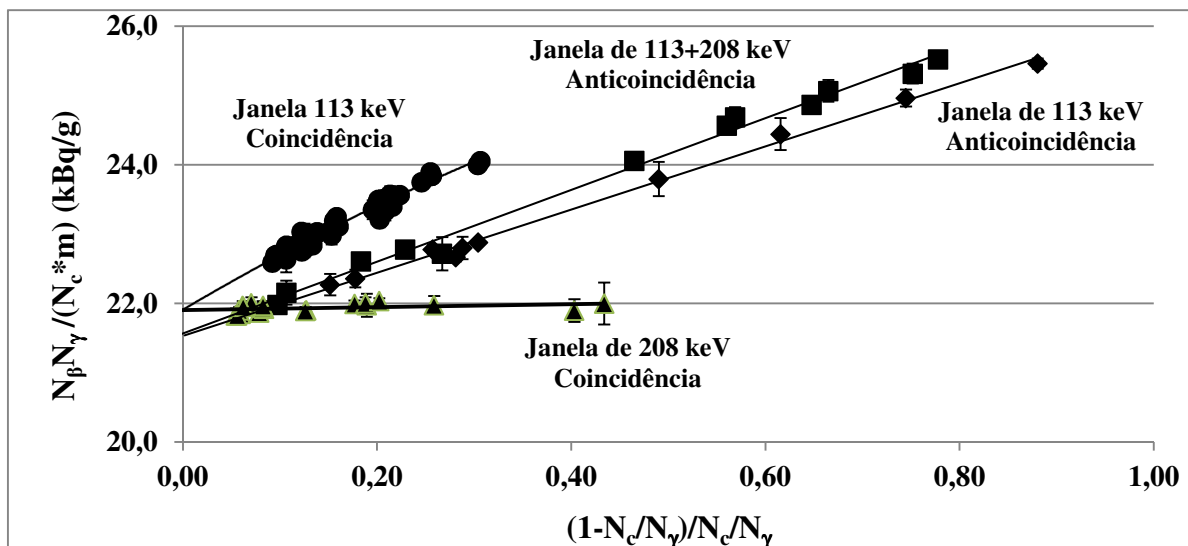


Figura 5.6 - Curvas de extrapolação para as medidas de coincidência e anticoincidência do  $^{177}\text{Lu}$

Baseado na observação do espectro gerado pelo detector de HPGe identificou-se a presença de uma impureza de  $^{177\text{m}}\text{Lu}$ . A proporção deste radionuclídeo foi quantificada através da análise das energias de 378,5 keV (29,7%) e 418,5 keV (21,3 %) no esquema de decaimento do  $^{177\text{m}}\text{Lu}$ . A razão entre as atividades da impureza e do  $^{177}\text{Lu}$  é de  $(0,0035 \pm 0,0008) \%$  na data de referência.

A concentração de atividade da solução utilizada para a preparação das fontes de PVC de  $^{177}\text{Lu}$  é obtido através da divisão entre a atividade da solução mãe e o fator de diluição, que neste caso tem o valor de 1,644724. Sendo assim, a tabela 5.2 apresenta os resultados da concentração da atividade obtidos pelos métodos de coincidência e anticoincidência para as duas janelas e as tabelas 5.3 e 5.4 apresentam as incertezas dos componentes da determinação da atividade.

Tabela 5.2 - Concentração de atividade determinada para cada método do  $^{177}\text{Lu}$

Método	Janela (keV)	Conc. de atividade	Incerteza
		(kBq/g)	(%)
Coincidência	112,95	21,907	0,58
Coincidência	208,37	21,902	0,61
Anticoincidência	112,95	21,530	0,23
Anticoincidência	112,95 + 208,37	21,563	0,19

Tabela 5.3 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Anticoincidência para o  $^{177}\text{Lu}$

Componente	Tipo	Incerteza padrão Relativa anticoincidência	
		(%)	
		Janela de 113 keV	Janela de (112 + 208) keV
Estatística de contagem	A	0,08	0,04
Pesagem	B	0,05	0,05
Radiação de fundo	B	0,01	0,01
Tempo vivo	B	0,01	0,01
Procedimento de ajuste	A	0,13	0,08
Meia-vida	B	0,16	0,16
Incerteza Padrão combinada		0,23	0,19

Tabela 5.4 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência para o  $^{177}\text{Lu}$

Componente	Tipo	Incerteza padrão relativa Coincidência (%)	
		Janela de 113 keV	Janela de 208 keV
Estatística de contagem	A	0,24	0,240
Pesagem	B	0,05	0,050
Radiação de fundo	B	0,36	0,508
Tempo morto	B	0,04	0,001
Procedimento de ajuste	A	0,24	0,150
Meia-vida	B	0,03	0,126
Tempo de resolução	B	0,03	0,010
Ajuste do retardo	B	0,34	0,124
Incerteza Padrão combinada		0,58	0,610

Para os valores apresentados na tabela 5.2, foram calculadas as médias ponderada e aritmética, além da mediana. Tais valores estão ilustrados na tabela 5.5 e a concentração de atividade adotada foi o resultado da média ponderada, já que este valor apresentou a menor incerteza.

Tabela 5.5 - Valores médios da concentração de atividade do  $^{177}\text{Lu}$

Média	Concentração de atividade (kBq/g)	Incerteza (kBq/g)	Incerteza relativa (%)
Aritmética	21,726	0,207	0,95
Ponderada	21,587	0,064	0,29
Mediana	21,733	0,16	0,74

A figura 5.7 apresenta um resumo dos valores encontrados para as concentrações de atividade da solução mãe, em cada método utilizado, com as respectivas janelas gama, em diferentes condições de contagem.

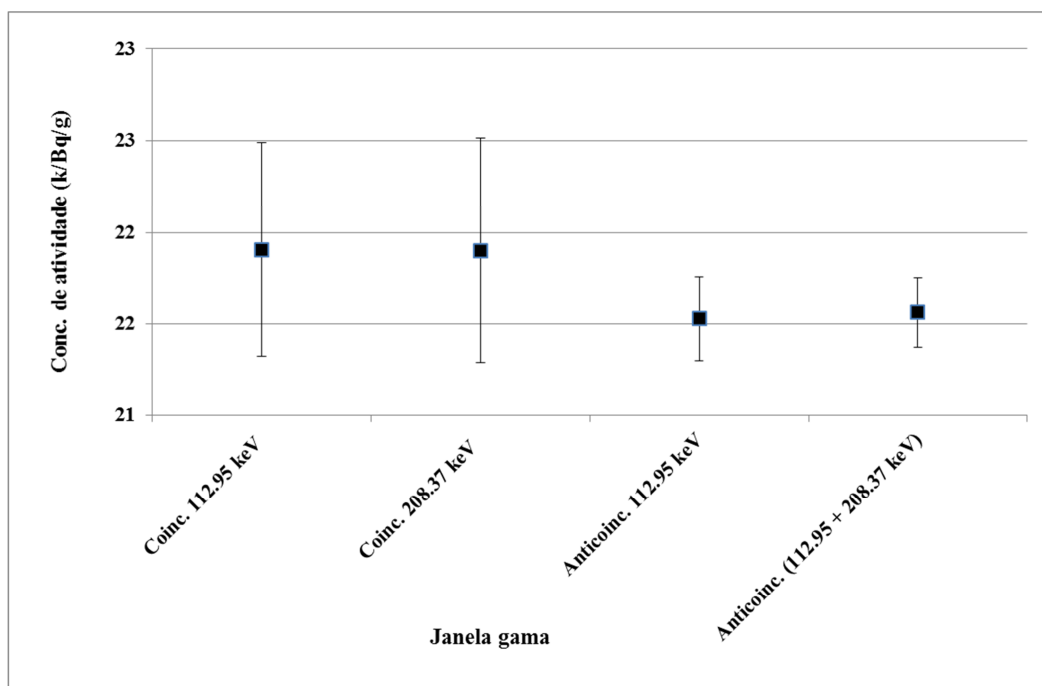


Figura 5.7 – Resumo das concentrações de atividades para a solução mãe

No caso do método de anticoincidência a variação de eficiência do canal beta foi realizada também por discriminação eletrônica. Cada ponto experimental da curva de extrapolação representa a média aritmética de 5 medições de 240 s cada. A figura 5.8 apresenta o espectro do  $^{177}\text{Lu}$ .

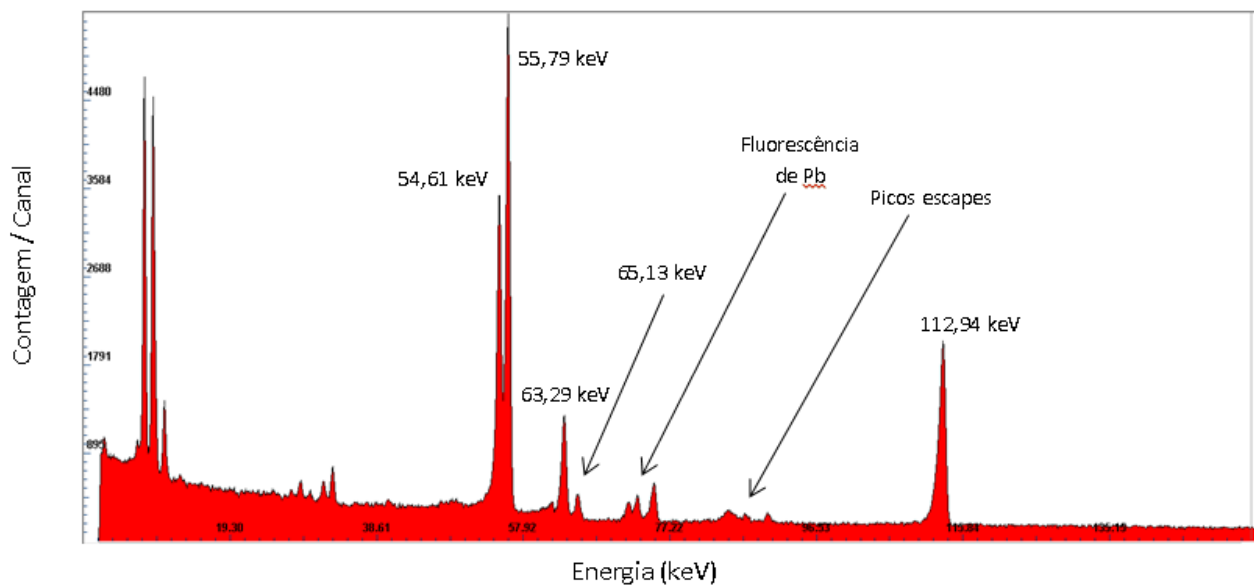


Figura 5.8 – Espectro de  $^{177}\text{Lu}$

A figura 5.8 apresenta um espectro de  $^{177}\text{Lu}$  obtido através do detector de CdTe com os picos de energias de emissões de Raios-X (54,61 a 55,79 keV) e gama (112,94 keV). Os quatro picos escapes do CdTe, tem suas energias, no espectro, entre 81,94 e 89,74 keV. Para a determinação das áreas de multipletos, como já foi dito anteriormente, foi utilizado o *COLEGRAM*. Na figura 5.9 é representada a região que compreende os fotopicos de 54,61 e 55,79 keV na fonte de  $^{177}\text{Lu}$ , para que seja feita a deconvolução.

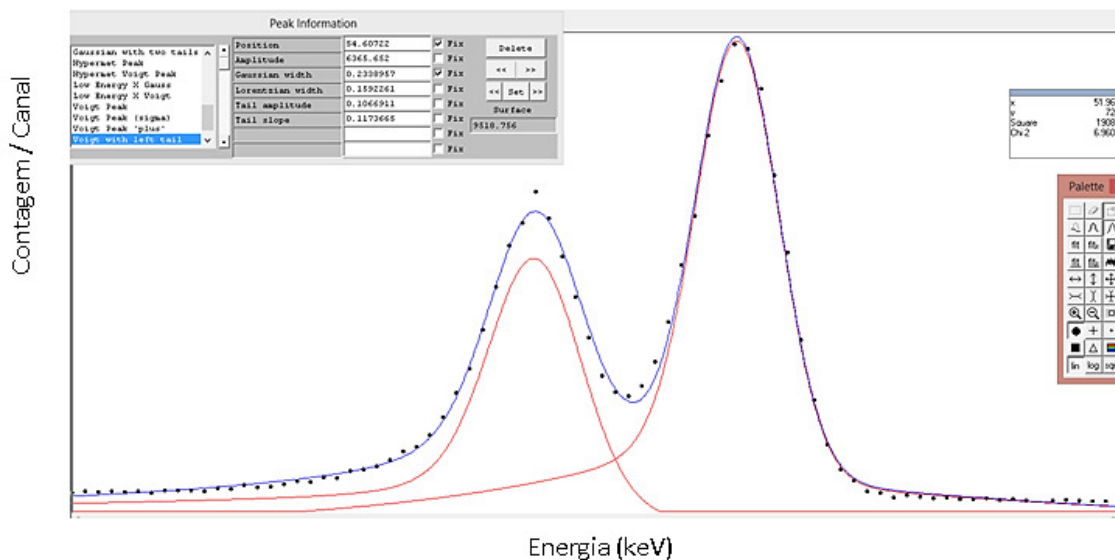


Figura 5.9 – Região de multipletos do  $^{177}\text{Lu}$  no COLEGRAM

Após a determinação das concentrações de atividade, os espectros de  $^{177}\text{Lu}$ , gerados pelo detector de CdTe, foram analisados e os principais fotopicos tiveram suas áreas registradas e suas eficiências determinadas por interpolação da curva de eficiência. Com estes elementos e as medidas da atividade de cada fonte, puderam ser calculados os valores das probabilidades de emissão dos Raios-X e  $\gamma$ . Os resultados obtidos foram comparados com as informações disponíveis na literatura. A tabela 5.6 apresenta esta comparação.

Tabela 5.6 - Valores comparativos do  $P_{x,\gamma}$  do  $^{177}\text{Lu}$ .

Energia (keV)	$P_{x,\gamma}$ experimental (%)	Incerteza padrão	$P_{x,\gamma}$ literatura LNHB (a) (%)	Incerteza
54,612	1,58	0,03	1,59	0,03
55,79	2,67	0,06	2,78	0,06
63,29	0,920	0,02	0,917	0,023
65,13	0,248	0,01	0,245	0,008
112,94	6,15	0,10	6,20	0,07



As incertezas experimentais apresentadas na tabela 5.6 foram a originadas pelas incertezas da área do fotopico (0,34 a 3,1 %), da atividade da fonte (0,5 %), do valor interpolado da eficiência (1,4 a 4,6 %) e da meia-vida (0,52 %). Em seguida, foi feita a soma quadrática desses componentes e extraída a raiz quadrada.

### 5.1.3. $^{153}\text{Sm}$

Este radionuclídeo tem sido comumente utilizado, nos últimos anos, sob a forma de solução injetável, para alívio das dores causadas pela metástase ósseas espalhadas pelo corpo. Além de também ser empregado nas terapias para doenças inflamatórias nas articulações e possuir uma meia-vida curta de 1,92 dias. (LÉPY, 2006)

A determinação da concentração da atividade do  $^{153}\text{Sm}$  foi realizada pelos métodos de coincidência, CIEMAT/NIST e câmara de ionização. Para a utilização dos métodos de coincidência e CIEMAT/NIST, foram criadas 12 fontes de cintilação líquida com 15 ml de coquetel cintilador, das quais 6 eram com *Ultima Gold* e as demais *Hi-Safe*. No primeiro sistema, com os dados obtidos durante a medição, foi criada uma curva de extrapolação onde cada ponto representa uma média aritmética de 3 medidas a cada 100 segundos, uma vez que a meia vida do  $^{153}\text{Sm}$  é bastante curta e por isso foi feita uma quantidade menor de medidas, em um intervalo de tempo menor. Para o sistema de coincidência foram medidas apenas 9 fontes. As demais decaíram rapidamente e não foi possível determinar suas atividades. A figura 5.10 representa a curva de eficiência beta em uma janela de 120 keV, obtida através das medições com as fontes de cintilação líquida, preparadas para a contagem em coincidência.

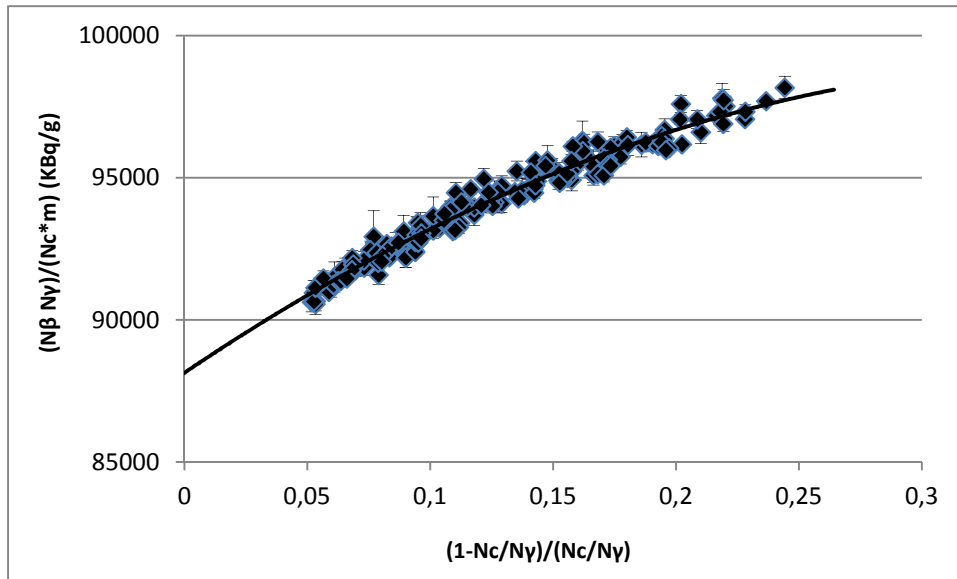


Figura 5.10 - Curva de extrapolação para as medidas de coincidência do  $^{153}\text{Sm}$

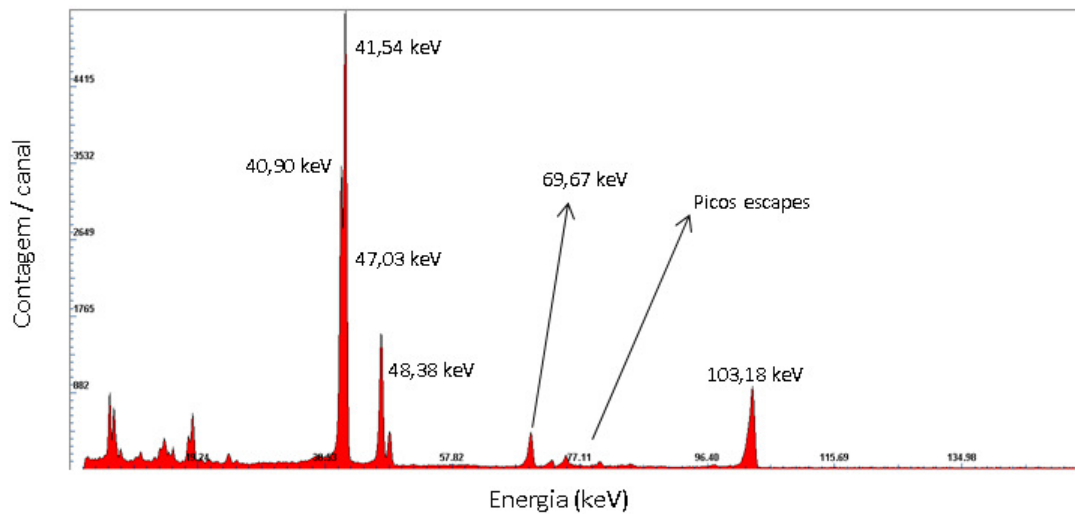


Figura 5.11 – Espectro de uma fonte de  $^{153}\text{Sm}$  obtida pelo CdTe

A figura 5.11 apresenta um espectro de  $^{153}\text{Sm}$  obtido através do detector de CdTe com os picos de energias de emissões de Raios-X (40,90 a 48,38 keV) e gamas (69,67 e 103,18 keV). Os quatro picos escapes do CdTe, tem suas energias, no espectro,

entre 72 a 79,8 keV. Na figura 5.12 é representada no *COLEGRAM*, a região que compreende os fotopicos de 40,90 a 41,54 keV na fonte de  $^{153}\text{Sm}$ , para que seja feita a deconvolução.

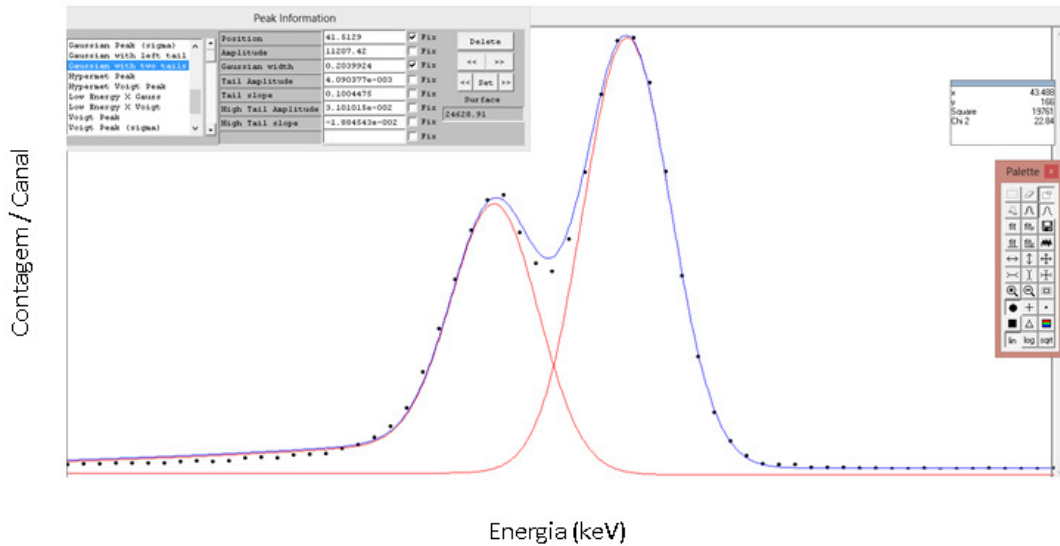


Figura 5.12 – Região de multipletos de uma fonte do  $^{153}\text{Sm}$  obtida no *COLEGRAM*

A concentração de atividade, determinada através de média ponderada, foi de  $(84,842 \pm 0,113)$  kBq/g. A figura 5.13 apresenta os valores das concentrações de atividade de cada uma das nove fontes de cintilação líquida utilizadas neste método e na tabela 5.7, encontram-se os valores dos componentes da incerteza da concentração da atividade.

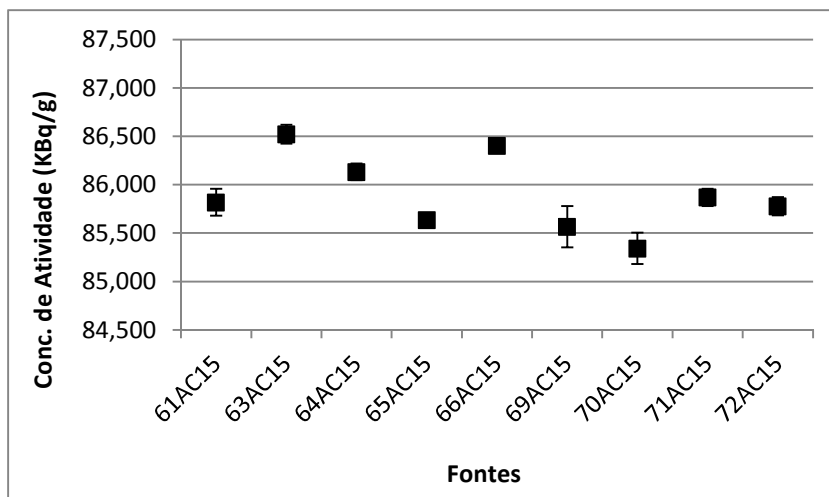


Figura 5.13 - Valores médios para cada fonte medida em coincidência do  $^{153}\text{Sm}$

Tabela 5.7 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência do  $^{153}\text{Sm}$

Componente	Tipo	Incerteza padrão relativa
		Coincidência (%)
Estatística de contagem	A	0,49
Pesagem	B	0,05
Radiação de fundo	B	0,55
Tempo morto	B	0,017
Procedimento de ajuste	A	0,24
Ajuste do retardo	B	0,03
Meia-vida	B	0,55
Incerteza Padrão combinada		0,78

Para o método CIEMAT/NIST, foram medidas as 12 fontes de cintilação líquida. Para cada fonte, duas medições de 300 segundos foram realizadas e os valores médios de concentração de atividade para os dois tipos de coquetel cintilador são:  $(84,595 \pm$

0,08) kBq/g para o *HiSafe* e  $(84,619 \pm 0,07)$  kBq/g para o *Ultima Gold*. A tabela 5.8 apresenta os componentes da incerteza da padronização através do método CIEMAT/NIST, para o  $^{153}\text{Sm}$ .

*Tabela 3.8 – Componentes da incerteza no método CIEMAT/NIST para o  $^{153}\text{Sm}$*

<b>Componente de Incerteza</b>	<b>Tipo</b>	<b>Incerteza (%)</b>
Atividade do padrão $\text{H}^3$	B	< 0,01
Massa do padrão $^3\text{H}$	B	< 0,01
Extinção do padrão $^3\text{H}$ (SQPE)	A	0,01
Contagens do padrão $^3\text{H}$	A	< 0,01
Parâmetros atômicos e nucleares	B	0,03
Assimetria das fotomultiplicadoras	B	0,25
Parâmetro de extinção (kB)	B	0,23
Massa das fontes de $^{153}\text{Sm}$	B	0,05
Extinção das fontes de $^{153}\text{Sm}$ (SQPE)	A	0,01
Contagens das fontes de $^{153}\text{Sm}$	A	0,07
Atividade das fontes de $^{153}\text{Sm}$ em kB = 0,007)	A	0,08
<b>Incerteza Combinada</b>		<b>0,36</b>

O terceiro método de determinação da concentração de atividade utilizado foi a câmara de ionização, preliminarmente calibrado com o resultado obtido pelo método de anticoincidência, com fator de correção medido em A/Bq. Esta medição é feita em termos de corrente de ionização, que é produzida a partir da interação entre o gás contido na câmara e a radiação emitida pelo conteúdo radioativo. O resultado

encontrado para a concentração de atividade do  $^{153}\text{Sm}$  com este método, foi de (84,832  $\pm$  0,339) kBq/g.

Com os valores obtidos na determinação da concentração de atividade do  $^{153}\text{Sm}$  através dos métodos de coincidência, CIEMAT/NIST e câmara de ionização e com uma análise nos espectros das fontes deste radionuclídeo, foram calculados os valores das probabilidades de emissão dos Raios-X e gama. As eficiências necessárias também foram obtidas pela interpolação da curva de eficiência. Os resultados encontrados foram comparados com as informações disponíveis na literatura e apresentados na tabela 5.9.

*Tabela 5.9 - Valores comparativos do  $P_{x,\gamma}$  do  $^{153}\text{Sm}$ .*

<b>Energia</b> <b>(keV)</b>	<b><math>P_{x,\gamma}</math> experimental</b> <b>(%)</b>	<b>Incerteza padrão</b>	<b><math>P_{x,\gamma}</math> literatura</b> <b>(LNHB (c)) (%)</b>	<b>Incerteza</b>
40,90	16,76	0,44	16,6	0,4
41,54	27,35	0,71	30,0	0,7
47,10	9,21	0,28	9,45	0,25
48,38	2,40	0,08	2,44	0,08
69,67	4,63	0,10	4,691	0,041
103,18	28,83	0,48	29,19	0,16

As incertezas experimentais apresentadas na tabela 5.9 foram a originadas pelas incertezas da área do fotopico (0,38 a 1,34 %), da atividade da fonte (0,78 %) , do valor interpolado da eficiência (1,23 a 3,46 %) e da meia-vida (0,04 %). Em seguida, foi feita a soma quadrática desses componentes e extraída a raiz quadrada.

#### 5.1.4. $^{123}\text{I}$

Este radionuclídeo é altamente utilizado em diagnósticos de problemas na tireoide e possui uma meia-vida conveniente de 13,21 horas. O  $^{123}\text{I}$  emite com maior intensidade um raio gama de 159 keV e pelo seu modo de produção, pode apresentar impurezas de  $^{121}\text{Te}$  e  $^{125}\text{I}$ . As figuras 5.14 e 5.15 apresentam, respectivamente o espectro obtido pelo CdTe e uma região de multipletos que compreende os picos de 31,10 e 31,76 keV.

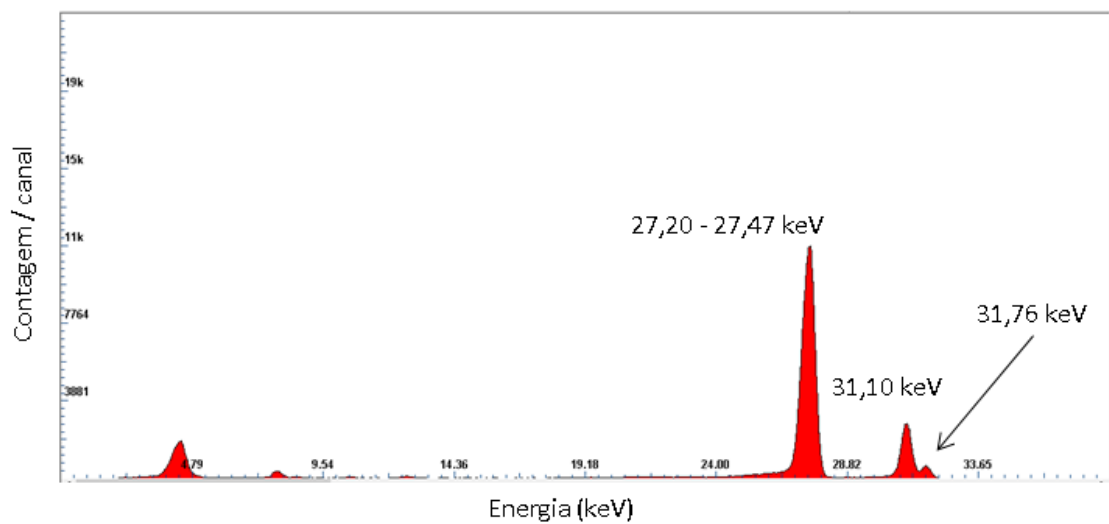


Figura 5.14 – Espectro do  $^{123}\text{I}$

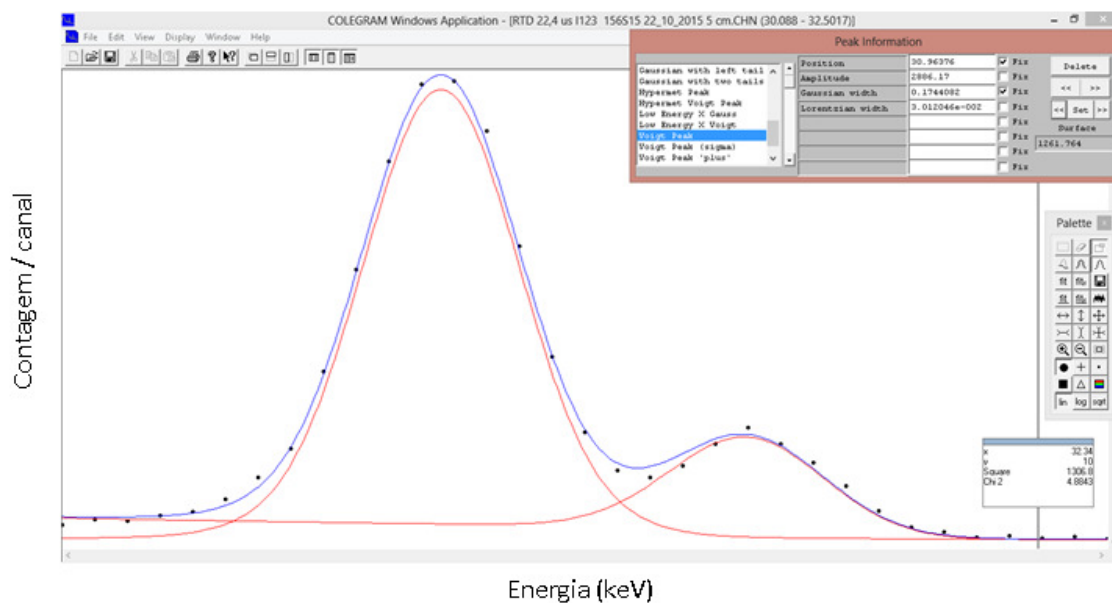


Figura 5.15 – Região de multipletos obtido pelo COLEGRAM para o  $^{123}\text{I}$

Para identificar a presença dessas impurezas uma fonte de  $^{123}\text{I}$  foi medida após 25 dias da data de referência, tempo suficiente para que todo o  $^{123}\text{I}$  tivesse decaído, restando apenas às impurezas (figura. 5.16). O  $^{121}\text{Te}$  possui Raios-X característicos na faixa de 26 a 30 keV como principais energias, enquanto o  $^{125}\text{I}$  emite uma radiação gama de 35,5 keV. As impurezas determinadas como razões em relação à atividade de  $^{123}\text{I}$ , na data de referência, foram  $(0,33 \pm 0,01)\%$  e  $(0,39 \pm 0,02)\%$ , respectivamente para  $^{121}\text{Te}$  e  $^{125}\text{I}$ .



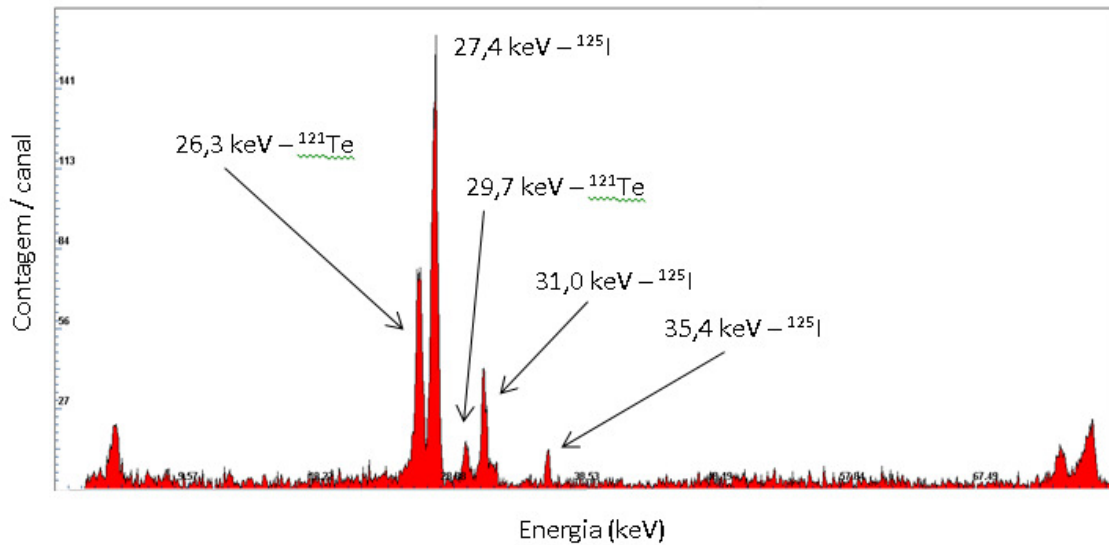


Figura 5.16 – Espectro da Impureza do <sup>123</sup>I (<sup>121</sup>Te e <sup>125</sup>I)

No método de coincidência, foram medidas 8 fontes de cintilação líquida na janela gama englobando o raio gama principal de 158 keV. Todos os pontos experimentais obtidos dessas 8 fontes foram plotados num único gráfico como apresentado na figura 5.17. Estes pontos foram analisados utilizando o algoritmo de Levenberg-Marquardt desenvolvido no programa LAB Fit que faz o ajuste linear desses pontos pelo método de mínimos quadrados (SILVA, 2011). O valor extrapolado para  $(1-N_c/N_\gamma)/(N_c/N_\gamma)=0$  fornece a concentração de atividade  $(1391,86\pm 13,22)$  kBq/g. A incerteza declarada corresponde a uma incerteza combinada de 0,95%, na data de referência de 21/10/2015 12h00 hora local.

Os valores das concentrações de atividade das 8 fontes medidas são apresentadas na figura 5.17. A média ponderada dessas fontes foi calculada como  $(1408,71\pm 7,69)$  kBq/g que é consistente, dentro de uma incerteza padrão, com o valor encontrado quando se analisa todos os pontos experimentais em um único gráfico. Os componentes da incerteza da concentração da atividade estão apresentados na tabela 5.10.

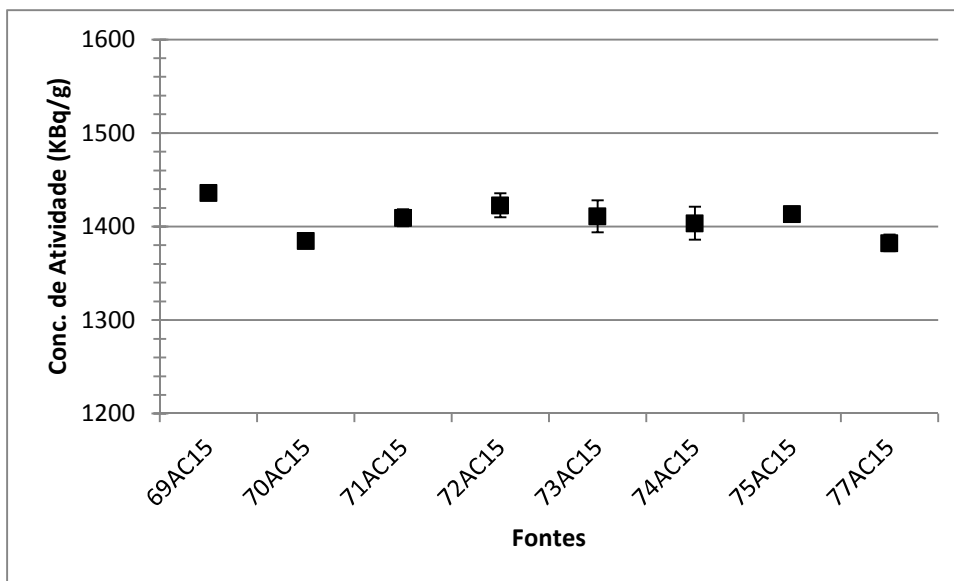


Figura 5.17 - Valores das concentrações de atividade das fontes de  $^{123}\text{I}$  medidas pelo método de coincidência. As barras das incertezas se referem a fator de abrangência  $k=2$ .

Tabela 5.10 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Coincidência para o  $^{123}\text{I}$

Componente	Tipo	Incerteza padrão relativa
		Coincidência (%)
Estatística de contagem	A	0,82
Pesagem	B	0,05
Radiação de fundo	B	0,02
Tempo morto	B	0,002
Procedimento de ajuste	A	0,17
Ajuste do retardo	B	0,01
Meia-vida	B	0,19
Incerteza Padrão combinada		0,95

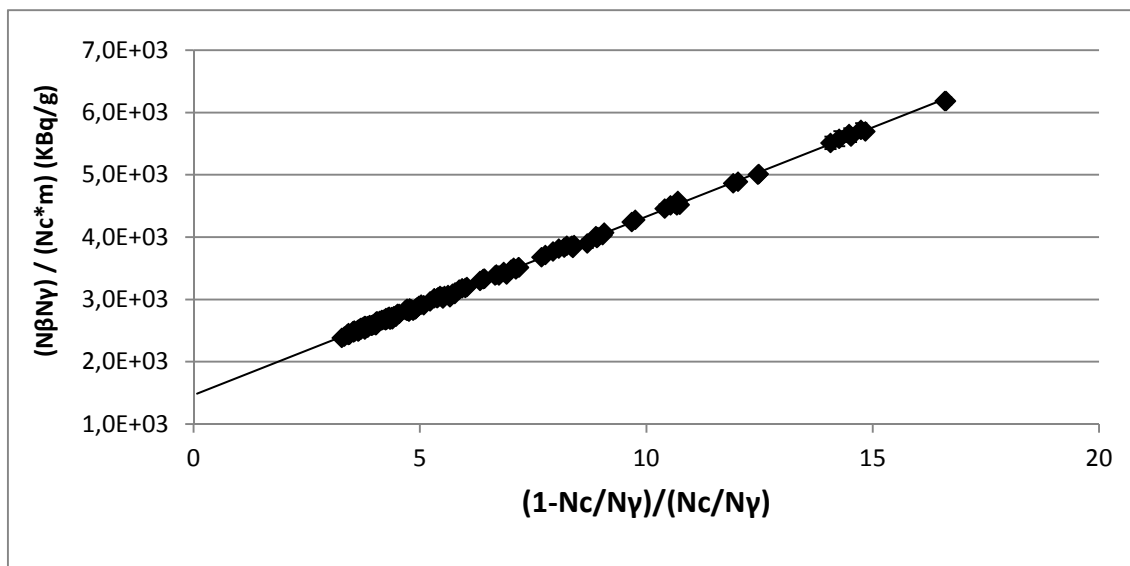


Figura 5.18 - Curva de extrapolação para as fontes medidas em coincidência do  $^{123}\text{I}$

No sistema de anticoincidência, foram utilizadas as mesmas condições do método de coincidência e o valor encontrado para a concentração de atividade foi de  $1394,110 \pm 0,016$  kBq/g. Já com a utilização do método CIEMAT/NIST, foram utilizados 5 frascos com coquetéis cintiladores com *Hi-Safe* e cada fonte foi medida 10 vezes. O resultado obtido para a atividade foi de  $1389,700 \pm 0,0058$  kBq/g. As componentes da incerteza da concentração da atividade encontrada nos métodos de CIEMAT/NIST anticoincidência, estão expostas nas tabelas 5.11 e 5.12, respectivamente.

Tabela 5.11 - Componentes da incerteza no método CIEMAT/NIST para o  $^{123}\text{I}$

<b>Componente de Incerteza</b>	<b>Tipo</b>	<b>%</b>
Atividade do padrão $^3\text{H}$	B	0,08
Massa do padrão $^3\text{H}$	B	0,01
Extinção do padrão $^3\text{H}$ (SQPE)	A	0,31
Contagens do padrão $^3\text{H}$	A	0,18
Parâmetros atômicos e nucleares	B	0,29
Assimetria das fotomultiplicadoras	B	0,25
Parâmetro de extinção (kB)	B	0,23
Massa das fontes de $^{123}\text{I}$	B	0,05
Extinção das fontes de $^{123}\text{I}$ (SQPE)	A	0,38
Contagens das fontes de $^{123}\text{I}$	A	0,09
Atividade das fontes de $^{123}\text{I}$	A	0,17
Incerteza total (k = 1)		0,72

Tabela 5.12 – Incertezas padrão relativa dos componentes no método Antico incidência para o  $^{123}\text{I}$

<b>Componente</b>	<b>Tipo</b>	<b>Incerteza padrão relativa Coincidência (%)</b>
Estatística de contagem	A	0,86
Pesagem	B	0,05
Radiação de fundo	B	0,31
Procedimento de ajuste	A	0,94
Meia-vida	B	0,07
Incerteza Padrão combinada		1,31

Com os resultados das medições das padronizações realizadas nos métodos de coincidência, anticoincidência e CIEMAT/NIST, foram calculadas as probabilidades de emissão dos Raios-X e gama do  $^{123}\text{I}$  (tabela 5.13), levando em consideração a existência de duas impurezas: o  $^{121}\text{Te}$  (0,33 %) e o  $^{125}\text{I}$  (0,39 %). As eficiências utilizadas para a determinação das probabilidades foram obtidas por meio de interpolação na curva de eficiência e houve uma correção na contagem oriunda do espectro, devido às impurezas do  $^{121}\text{Te}$  e  $^{125}\text{I}$ .

*Tabela 5.13 - Valores comparativos do  $P_{x,y}$  do  $^{123}\text{I}$ .*

<b>Energia</b> <b>(keV)</b>	<b><math>P_{x,y}</math> experimental</b> <b>(%)</b>	<b>Incerteza</b> <b>padrão</b>	<b><math>P_{x,y}</math> literatura</b> <b>(LNHB (b)) (%)</b>	<b>Incerteza</b>
27,202	25,81	0,46	24,69	0,20
27,47	44,65	0,80	45,98	0,29
31,10	13,66	0,38	13,16	0,17
31,76	2,73	0,09	2,86	0,08

As incertezas experimentais apresentadas na tabela 5.13 foram originadas pelas incertezas da área do fotopico (0,79 a 2,28 %), da atividade da fonte (0,95 %), do valor interpolado da eficiência (1,33 a 2,63 %) e da meia-vida (0,10 %). Em seguida, foi feita a soma quadrática desses componentes e extraída a raiz quadrada.

## Capítulo 6

### CONCLUSÕES

Os resultados obtidos neste trabalho vão contribuir para aumentar o conhecimento das probabilidades de emissão de Raios-X característicos do esquema de decaimento de alguns radionuclídeos importantes utilizados na medicina nuclear.

As atividades das soluções radioativas de  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{123}\text{I}$  foram determinadas pelo método de coincidência e confirmadas por outros métodos garantindo uma análise espectrométrica confiável na determinação das probabilidades de emissão.

As eficiências para as energias correspondentes aos radionuclídeos interpolados da curva de eficiência na região de 5 a 140 keV atestam a confiabilidade da curva pelos resultados obtidos no cálculo das probabilidades de emissão.

Os resultados encontrados para as probabilidades de emissão dos fótons analisados para  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{153}\text{Sm}$  e  $^{123}\text{I}$  são consistentes, dentro de uma incerteza padrão, quando comparados com os valores listados na referência (LNHB (a), (b), (c)). As impurezas presentes nas amostras utilizadas para preparação das fontes causam dificuldades no cálculo correto das áreas dos fotopicos requerendo uma correção cuidadosa, principalmente no caso do  $^{123}\text{I}$  onde foram identificadas duas impurezas.

Devido às baixas energias dos fótons estudados as correções de absorção entre a fonte e o detector devem ser cuidadosamente determinadas. Outro fator importante é a correção para o pico escape que é muito mais pronunciado no CdTe que no Si(Li) ou HPGe.

Finalmente este trabalho mostrou que o detector de CdTe pode ser utilizado para espectrometria de fótons de baixa energia com a vantagem de não necessitar de resfriamento externo com nitrogênio líquido.

As desvantagens são sua baixa eficiência devidos às suas dimensões, resolução pior em relação aos detectores convencionais como Si(Li) e HPGe (para energias acima de 100 keV) e a distorção da forma gaussiana do espectro na direção de baixa energia o que deteriora a sua resolução.

Futuramente, pretende-se realizar estudos com radionuclídeos que também sejam utilizados em medicina nuclear tais como:  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{124}\text{I}$ . Além de obter uma curva de eficiência em função da energia por simulação, para que se possa comparar com a curva apresentada pelo fabricante. Será realizada também uma comparação mais detalhada entre o CdTe e outros detectores como o Ge, SiLi e o LaBr (Brometo de Lantânio).

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AMPTEK. *XR-100T CdTe X-Ray & Gamma Ray Detector*. Disponível em: <<http://www.amptek.com/products/xr-100t-cdte-x-ray-and-gamma-ray-detector/>>.

Acessado em: 13/01/2016.

ANDUJAR-PEREZ.A, PIBIDA, L, 2004. *Performance of CdTe, HPGe and NaI(Tl) detectors for radioactivity measurements*. Applied Radiations and Isotopes, v. 60, pp 41 – 47, 2004.

ARAÚJO, M. T. F, 2015. *Padronização absoluta do  $^{121}\text{Te}$  por espectrometria gama utilizando o método pico soma*. Dissertação (Mestrado em Radioproteção e Dosimetria) – IRD/CNEN, Rio de Janeiro.

BAERG, A.P. MEGHIR, S. BOWES, G.C. 1964. *Extension of the efficiency tracing method for the calibration of pure  $\beta$ -emitters measurement of radioactive disintegration rate by the coincidence method*. Int. J. Applied Radiation and Isotopes v.15, pp 279 – 287.

BAERG, A. P., 1966, “ *Measurement of Radioactive Disintegration Rate by the Coincidence Method*”. Metrologia. V.2, pp 23-32.

BIPM (Bureau International des Poids et Mesures). *List of Comparisons*. Disponível em:<[http://kcdb.bipm.org/appendixB/KCDB\\_ApB\\_search\\_result.asp?search=1&met\\_idy=4bra\\_idy=18&cmt\\_idy=0&ett\\_idy\\_org=0&epo\\_idy=0&cou\\_cod=BR](http://kcdb.bipm.org/appendixB/KCDB_ApB_search_result.asp?search=1&met_idy=4bra_idy=18&cmt_idy=0&ett_idy_org=0&epo_idy=0&cou_cod=BR)>.Acessado em: 13/01/2016



BOUCHARD, J, 2002. *A new set of electronic modules (NIM standard) for a coincidence system using the pulse mixing method*. Applied Radiation and Isotopes v. 56, pp 269 - 273.

BOWLES N. E. *et al*, 1998. *Standardization of  $^{153}\text{Sm}$* . Applied Radiation and Isotopes, V. 49, n.11, pp 1345 – 1347.

BRINKMAN, G.A., LINDNER, L., VEENBOER, J.TH., 1977, “Sumpeak calibration of  $^{123}\text{I}$ ”, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* V. 28, pp. 271-275.

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

BRYANT. J, 1967. “*Advantage of Anticoincidence Counting for Standardization of Radionuclides Emitting Delayed Gamma*”. IAEA Symp Standardization of Radionuclides SM 79/21.

CORREIA, A. R, 2011. *Fatores de correção dos calibradores de radionuclídeos comerciais para várias geometrias de medição de radiofármacos*. Dissertação (Mestrado em Radioproteção e Dosimetria) – IRD/CNEN, Rio de Janeiro.

CRUZ, P. A, 2013. *Padronização absoluta de radionuclídeos pelo método TDCR de cintilação líquida*. Tese (Doutorado em Ciências) – COPPE/UFRJ.

DA SILVA, C. J, 2008. *Implementação de um Sistema de Anti-coincidência  $4\pi$  NaI(Tl)-CL com Cronometragem em Tempo Vivo e Tempo Morto Extendível*. Tese de

Doutorado. COPPE/UFRJ.

DEL SORDO, S *et al*, 2009. *Progress in the Development of CdTe and CdTeZn Semiconductor Radiation Detectors for Astrophysical and Medical Applications*. Sensors v.9, pp 3491 – 3526.

DVORAKOVA, Z. *et al*, 2008. *Production of  $^{177}\text{Lu}$  at the new research reactor FRM-II: Irradiation yield of  $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$* . Applied Radiation and Isotopes v. 66, pp 147-151. 2008.

DZIEL T. *et al*, 2014. *Standardization of Sm-153 solution by absolute methods*. Applied Radiation and Isotopes, v. 87, pp 19-23.

GANDY, A, 1963. *Mesure absolue de l'activité des radionucléides par la méthode de coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ : étude d'une méthode de correction automatique des erreurs instrumentales*. Int. J. Applied Radiation Isotopes v. 14, pp 385-396

GISHITOMI K. C, 2012. *Determinação da taxa de desintegração e das probabilidades de emissão gama por decaimento do I-123*. Dissertação (Mestrado em Ciências) – IPEN/USP.

IWAHARA A *et al*, 2008. *Padronização primária de uma solução de  $^{177}\text{Lu}$* . In: Congresso Brasileiro de Metrologia, 5, Salvador.

MERRIT, J. S, 1973. *Present Status in Quantitative Source Preparation*. Nucl. Instr. And Methods v.112, pp 325-332.

KAWADA, Y. 1972. *Extended Applications and Improvement of the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence Method in Standardization of Radionuclides*. ETL report n° 730.

KNOLL, G. F., 1989, *Radiation Detection and Measurement*. 2nd ed. New York, John Wiley & Sons.

KOSKINAS M. F. *et al*, 2012. *Disintegrate rate and gamma ray emission probability per decay measurement of  $^{123}\text{I}$* . Applied Radiation and Isotopes, v. 70, pp 2091 – 2096.

LIMOUSIN O, 2003. New trends em CdTe and CdZnTe detectors for X and gamma-ray applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research A*, v. 504, pp 24-37.

LOUREIRO, J, 2013. *Sistema de calibração de radionuclídeos englobando os métodos de coincidência, anticoincidência e CIEMAT/NIST*. Tese (Doutorado em Ciências) – COPPE/UFRJ.

LÉPY, M. *et al*, 2006. *Determination of the intensity of X- and gamma-ray emissions in the decay of  $^{153}\text{Sm}$* . Applied Radiation and Isotopes v. 64, pp 1428 – 1434.

(a) LNHB. *Tabela de Radionuclídeos –  $^{177}\text{Lu}$* . Disponível em: <[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Lu-177\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Lu-177_tables.pdf)> Acesso em 11/02/2016.

(b) LNHB. *Tabela de Radionuclídeos –  $^{123}\text{I}$* . Disponível em: <[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/I-123\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/I-123_tables.pdf)> Acesso em 11/02/2016.

(c) LNHB. *Tabela de Radionuclídeos –  $^{153}\text{Sm}$* . Disponível em: <[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Sm-153\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Sm-153_tables.pdf)> Acesso em 11/02/2016.

(d) LNHB. *Presentation of the COLEGRAM Software* Disponível em: <[http://www.nucleide.org/Gamma\\_spectro/NT\\_04-26\\_Colegram.pdf](http://www.nucleide.org/Gamma_spectro/NT_04-26_Colegram.pdf)>. Acessado em: 13/01/2016.

(e) LNHB. *Tabela de Radionuclídeos –  $^{177m}\text{Lu}$* . Disponível em: <[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Lu-177m\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Lu-177m_tables.pdf)> Acesso em 11/02/2016.

MILENIC, D.E.; BRECHBIEL, M.W, 2004. *Targeting of radio-isotopes for cancer therapy. Cancer Biol. Ther.*, v.3, pp 361-370.

MOREIRA, D. S, 2000. *Medida absoluta da taxa de desintegração e da probabilidade de emissão gama do  $^{42}\text{K}$* . Dissertação (Mestrado em Ciências) – IPEN.

NIST. Disponível em: <<http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm>>. Acessado em: 13/01/2016.

NASCIMENTO, T. S, 2014. *Padronização de  $^{90}\text{Y}$  pelo método CIEMAT/NIST em sistema de cintilação líquida e pelo método de traçador em sistema de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$* . Dissertação (Mestrado em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear) – IPEN/USP.

NICHOLS, A. L., 2001, *Decay data: review of measurements, evaluations and compilations, Applied Radiation and Isotopes*, v. 55, pp. 23-70.

OKUNO, Emico; YOSHIMURA, Elisabeth. *Física das radiações*. São Paulo: Oficina dos textos, pp 2010. 296.

OLIVEIRA, E, 2012. *Padronização absoluta de radionuclídeos emissores de pósitrons por espectrometria gama com o método pico-soma*. Tese (Doutorado em Ciências) – COPPE/UFRJ.

REZENDE, E. *et al*, 2012. *Radioactivity measurements of  $^{177}\text{Lu}$ ,  $^{177}\text{In}$  and  $^{123}\text{I}$  by different absolute methods*. *Applied Radiation and Isotopes* v.70, pp 2081-2086.

REZENDE, E. A, 2011. *Padronização absoluta do  $^{117}\text{Lu}$  e do  $^{111}\text{In}$* . Dissertação (Mestrado em Radioproteção e Dosimetria) – IRD/CNEN.

REDUS R. *et al*, 2009. *Characterization of CdTe detectors for quantitative X-ray spectroscopy*. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, v. 56, n. 4, 2524 – 2532.

REHER D. *et al*. *Standardization of  $^{123}\text{I}$* , 1984. *Applied Radiation and Isotopes*, v.35, n. 10, pp 923 – 926

SILVA W.P. and SILVA C.M.D.P.S. *LAB Fit Curve Fitting Software (Nonlinear Regression and Treatment of Data Program) V 7.2.48 (1999-2011)*, online, Disponível em: [www.labfit.net](http://www.labfit.net). Acessado em 13/01/2016.

SATO G. *et al*, 2004. *Characterization of CdTe/CdTeZn detectors*. IEEE Transactions on Nuclear Science, v. 49, n. 3, pp 1258 – 1263.

SCHÖTZIG U. *et al*, 1999. *Standardization and decay data of <sup>153</sup>Sm*. Applied Radiation and Isotopes, v. 51, pp 169 – 175.

SORDO S. *et al*, 2009. *Progress in the Development of CdTe and CdZnTe Semiconductor Radiation Detectors for Astrophysical and Medical Applications*. Sensors v. 9, pp 3491 – 3526.

TAUHATA, L., SALATI, I. P. A., PRINZIO, R. e PRINZIO, A. R., 2001, *Radioproteção e dosimetria: fundamentos*. 3<sup>a</sup> Revisão. Rio de Janeiro, IRD/CNEN.

VIÑA J. C., 2005. *Metastatic Bone Pain Management with Radioactive Isotopes*. Brazilian Archives of Biology and Technology. V. 48, pp 127 – 135.

WOJDOWSKA W *et al*, 2015. *Standardization of Procedures for the Preparation of <sup>177</sup>Lu and <sup>90</sup>Y-labeled DOTA-Rituximab Based on the Freeze-dried Kit Formulation*. Current Radiopharmaceuticals, v. 8, pp 62 – 68.

ZIMMERMAN B. E, UNTERWEGER M. P, BRODACK J.W, 2001. *The Standardization of  $^{177}\text{Lu}$  by  $4\pi\beta$  liquid scintillation spectrometry with  $^3\text{H}$  – standard efficiency tracing.* Applied Radiation and Isotopes, v.54, pp 623 – 631.