



COPPE/UFRJ

IMPLEMENTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANTI-COINCIDÊNCIA $4\pi\text{NaI(Tl)-CL}$
COM CRONOMETRAGEM EM TEMPO VIVO E TEMPO MORTO EXTENDÍVEL

Carlos José da Silva

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
Dezembro de 2008

IMPLEMENTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANTI-COINCIDÊNCIA 4π CL-NaI(Tl)
COM CRONOMETRAGEM EM TEMPO VIVO E TEMPO MORTO EXTENDÍVEL

Carlos José da Silva

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.

Aprovada por:



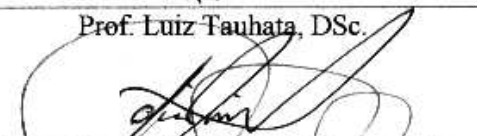
Prof. Ricardo Tadeu Lopes, DSc.



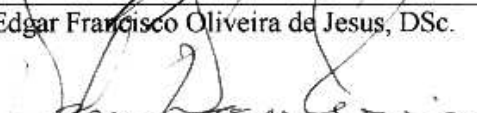
Prof. Akira Iwahara, DSc.



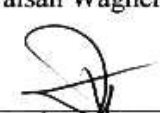
Prof. Luiz Tauhata, DSc.



Prof. Edgar Francisco Oliveira de Jesus, DSc.



Prof. Walsan Wagner Pereira, DSc.



Prof. Nelson Braz, DSc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

DEZEMBRO DE 2008

Silva, Carlos José da

Implementação de um Sistema de Anti-Co incidência 4π CL-NaI(Tl) com Cronometragem em Tempo Vivo e Tempo Morto Extendível/ Carlos José da Silva – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2008.

XII , 100 p: il.; 29,7 cm.

Orientador: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2008.

Referências Bibliográficas: p. 71-74

1. Padronização Direta. 2. Tempo Vivo. 3. Anti-co incidência. I. Lopes, Ricardo Tadeu, *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

Aos meus pais Isolina Leal da Silva, Milton J. da Silva (in memoriam), a Joana e aos meus Filhos João Pedro e Daniel Luiz.

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria pelo apoio institucional e pelo ótimo ambiente de trabalho que permitiram a realização deste trabalho.

Aos colegas do laboratório de radionuclídeos pelas discussões técnicas e auxílio na diferentes etapas do trabalho de pesquisa.

Aos orientadores Ricardo Tadeu Lopes e Akira Iwahara pelo apoio e estímulo durante a realização do trabalho.

Ao Engenheiro Roberto Poledna pelas importantes discussões e apoio no desenvolvimento do sistema de padronização primária bem como o trabalho de ajustes e manutenção da instrumentação eletrônica.

A Maria Antonieta Ramos Ribas Di Prinzio e Estela Maria de Oliveira pela ajuda na preparação das amostras e diluições das soluções radioativas utilizadas durante a realização deste trabalho.

A equipe da oficina mecânica do IRD pela atenção na confecção da blindagem bem como na confecção da câmara de contagem e suportes utilizados no sistema.

Ao Dr Christophe Bobin do laboratório Nacional Henry Becquerel pelas discussões e sugestões durante a implantação da técnica de anti-coincidência no LNMRI.

A secretária do programa de Engenharia Nuclear da COPPE Josevalda Laranjeira Noronha pelo suporte administrativo.

Ao gerente do Laboratório de metrologia de radionuclídeos Dr. José Ubiratan Delgado pelo apoio, estímulo e a manutenção de um ambiente de trabalho propício ao desenvolvimento de trabalho científico.

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

IMPLANTAÇÃO DE UM SISTEMA DE ANTI-COINCIDÊNCIA 4π CL-NaI(Tl)
COM CRONOMETRAGEM EM TEMPO VIVO E TEMPO MORTO EXTENDÍVEL

Carlos José da Silva

Dezembro/2008

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Programa: Engenharia Nuclear

O objetivo deste trabalho é a implementação de um sistema de medição primária na área de metrologia de radionuclídeos que permita a padronização direta da grandeza atividade pela técnica de anti-coincidência e cronometragem em tempo vivo. Este sistema de medição poderá também ser utilizado para padronizar radionuclídeos que possuam estados isoméricos e que decaem pela emissão de raios gama retardados.

Os resultados obtidos foram a padronização da grandeza atividade pelo método de anti-coincidência do ^{51}Cr , ^{67}Ga , ^{55}Fe , ^{131}I , ^{124}Sb , ^{177}Lu e ^{241}Am , bem como a incerteza de medição.

Os resultados demonstram que a metodologia utilizada no sistema de padronização primário implementado apresenta um ótimo desempenho constatado pela comparação de resultados com o sistema de coincidência convencional e o sistema de referência com câmara de ionização; também observou-se uma redução das incertezas de medição devido a eliminação das correções de tempo morto e tempo de resolução. Outra constatação comprovada com os resultados experimentais foi à ótima linearidade das curvas de extrapolação da função eficiência demonstrando resultados semelhantes ao sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ com detector proporcional pressurizado.

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

IMPLEMENTATION OF AN ANTI-COINCIDENCE 4π LS-NaI(Tl) SYSTEM LIVE
TIMED AND EXTENDING DEAD TIME

Carlos José da Silva

December/2008

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Department: Nuclear Engineering

The objective of this work is to implement a measurement system in the field of radionuclide metrology for primary standardization of quantity activity by anti-coincidence method and live-timing technique. This system of measurement can be used in the standardization of radionuclides with prompt beta-gamma decay and also for those with isomeric states that presents the emission of delayed gamma ray.

The standardization results were activity per mass unit by the technique of anti-coincidence of ^{51}Cr , ^{67}Ga , ^{55}Fe , ^{131}I , ^{124}Sb , ^{177}Lu and ^{241}Am , and the uncertainty of measurement.

The results have shown that the methodology used in implementing the primary system of standardization presents a high performance demonstrated by comparing the results with the conventional coincidence system and also with reference system with ionization chamber; there also was a reduction of uncertainties because of the elimination of correction due to dead time and resolution time. Another finding confirmed with the experimental results was the excellent linearity of the extrapolation curves of the function efficiency showing similar results of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence system using pressurized proportional counter.

ÍNDICE

	Página
1. INTRODUÇÃO	1
1.0 Histórico	1
1.1 Organização do Trabalho	6
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	7
2.0 Evolução dos Métodos de Calibração Absoluta de Radionuclídeos	7
2.1 Métodos Primários de Padronização da Grandeza Atividade	7
2.2 Método de Coincidência	10
2.2.1 Expressão para o Cálculo de Coincidências β - γ Simples	12
2.2.2 Esquema de Decaimento Complexo	13
2.2.3 Método de Extrapolação da Função Eficiência	14
2.2.3.1 Principais Dificuldades na Aplicação do Método de Extrapolação	15
2.3 Padronização de Emissores que Decaem por Captura Eletrônica pelo Método de extrapolação da Função Eficiência	15
2.3.1 Decaimento por Captura Eletrônica com um Nível Excitado	16
2.3.2 Decaimento por Captura Eletrônica com dois Níveis Excitados	18
2.3.3 Fatores de Correção para Alguns Radionuclídeos Usuais	19
2.3.4 Expressões para o Cálculo da Atividade pelo Método de Coincidência	20
2.4 Método de Anti-Coincidência	20
2.4.1 Princípio e Realização	22
2.4.2 Correções Aplicadas ao Método de Anti-coincidência	24
2.4.3 Contagem de Anti-coincidência em Tempo Vivo	26
2.4.3.1 Princípio do Tempo Vivo	26
2.5 Método do Traçador	28

2.5.1 Condições Necessárias para a Aplicação do Método do Traçador	28
2.6 Determinação das Incertezas de Medição	29
2.6.1 Componentes de Incerteza do Tipo B	30
2.6.1.1 Componentes de Incerteza do Tipo B-Método de Coincidência	30
2.6.1.2 Componentes de Incerteza do Tipo B-Método de Anti-Coincidência	30
2.6.2 Incerteza Padrão Combinada	30
2.6.3 Incerteza Padrão Expandida	30
3. ALGUNS CONCEITOS UTILIZADOS EM METROLOGIA	31
3.0 Fundamentos da Metrologia	31
3.1 A Convenção do Metro	31
3.2 Arranjo de Reconhecimento Mútuo	31
3.3 Rastreabilidade Metrológica	32
3.3.1 Comparações-Chave	34
3.3.2 Sistema Internacional de Referência para Emissores Gama	35
4. METODOLOGIA	37
4.0 Resumo da Metodologia	37
4.1 Aquisição de Dados	37
4.2 Oscilador a Cristal	37
4.3 Testes Preliminares com os Módulos MTR2	37
4.4 Algoritmo de Cálculo em Excel	38
4.5 Medições do ^{67}Ga	38
4.6 Medições de ^{51}Cr e ^{55}Fe	38
4.7 Desenvolvimento de Projeto para Blindagem da Célula Cintiladora	38
4.8 Testes do Sistema de Anti-Coincidência com Detectores com Cintilador Líquido	39

4.9	Padronização do ^{131}I , ^{124}Sb e ^{177}Lu	39
4.10	Determinação de Impurezas	39
4.11	Determinação das Incertezas	39
5. PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS, EQUIPAMENTOS E MATERIAIS		
5.1	Radionuclídeos Utilizados	40
5.2	Produtos Químicos	40
5.3	Módulos Eletrônicos	40
5.3.1	Sistema de Coincidência	40
5.3.2	Sistema de Anti-Coincidência	42
5.4	Detectores	42
5.5	Equipamentos de Apoio	43
5.6	Procedimento Experimental	43
5.6.1	Preparação de Amostras	43
5.6.2	Ajuste na Eletrônica	44
5.6.2.1	Medição da Frequência de Referência	44
5.6.2.2	Atraso no Canal Gama	45
5.6.2.3	Tempo Morto Utilizado	45
5.6.2.4	Fixação da Janela de Contagem no Canal Gama	45
5.6.2.5	Tensão de Operação do Detector de NaI(Tl)	45
5.6.2.6	Estabelecimento da Tensão de Operação do Detector Proporcional	45
5.6.2.7	Ajuste de Ganho de Cada Hemisfério do Detector Proporcional	46
5.6.2.8	Tensão de Operação do Detector com Cintilador Líquido	46
5.6.2.9	Variação da Eficiência no Canal Beta	47
5.7	Fundamentos para Medição dos Radionuclídeos em Estudo	47
5.7.1	Medição do ^{51}Cr	47

5.7.2	Medição do ^{67}Ga	47
5.7.3	Medição do ^{55}Fe	49
5.7.4	Medição do ^{241}Am	50
5.7.5	Medição do ^{131}I	51
5.7.6	Medição do ^{124}Sb	51
5.7.7	Medição do ^{177}Lu	52
5.8	Aquisição e Processamento de Dados	53
5.8.1	Aquisição de Dados	53
5.8.2	Processamento de Dados	53
6.	RESULTADOS E DISCUSSÃO	54
6.1	Padronização do ^{51}Cr	54
6.2	Padronização do ^{67}Ga	56
6.3	Padronização do ^{55}Fe	58
6.4	Padronização do ^{241}Am	60
6.5	Padronização do ^{131}I	62
6.6	Padronização do ^{124}Sb	63
6.7	Padronização do ^{177}Lu	66
7.	CONCLUSÕES	69
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	71
	ANEXO A–PRINCIPAIS PARÂMETROS DE CORREÇÃO UTILIZADOS NA	
	DETERMINAÇÃO DA GRANDEZA ATIVIDADE	75
A.1	Tempo Morto	75
A.1.1	Tempo Morto em Série	76
A.1.2	Método de Medição de Tempo Morto	76
A.2	Tempo de Resolução	77

A.3 Radiação de Fundo	78
A.4 Decaimento	78
A.5 Elétrons de Conversão Interna	79
A.6 Sensibilidade Gama do Detector Proporcional, $\epsilon_{\beta\gamma}$	80
A.7 Sensibilidade Beta do Detector Gama	80
A.8 Coincidências Acidentais	80
ANEXO B–EQUAÇÃO DE COX-ISHAN	81
B.1 Algoritmo de Smith Baseado no Trabalho de Cox-Ishan	81
ANEXO C–PRINCIPAIS TIPOS DE DETECTORES UTILIZADOS EM	
METROLOGIA DE RADIONUCLÍDEOS	84
C.1 Detectores a Gás	84
C.1.1 Detector Proporcional	84
C.1.2 Câmara de Ionização	84
C.2 Detector a Semicondutor	85
C.3 Detectores Cintiladores	85
C.3.1 Cintiladores Orgânicos	85
C.3.2 Cintiladores Líquidos	86
C.3.3 Cintiladores de NaI(Tl)	88
ANEXO D–TABELA DE RADIONUCLÍDEOS – LABORATORIO NACIONAL	
HENRI BECQUEREL 2007	89

Capítulo 1

INTRODUÇÃO

1.0 Histórico

O Instituto de Radioproteção e Dosimetria, (IRD) pertencente à Comissão Nacional de Energia Nuclear, (CNEN) recebeu em 1989, a delegação do Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial, (INMETRO), para atuar como laboratório designado na área de metrologia das radiações ionizantes. Dentre suas principais atribuições, cabe ao IRD, através de seu Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes, (LNMRI): a) implantar e manter métodos e padrões relacionados à metrologia das radiações ionizantes; b) participar de comparações-chaves organizadas pelo Bureau Internacional de Pesos e Medidas, (BIPM); c) participar das comparações promovidas pelas organizações regionais de metrologia; d) promover e organizar a coerência das medições realizadas no Brasil no campo das radiações ionizantes.

Desta forma, na área de metrologia de radionuclídeos, o LNMRI implantou o seu primeiro sistema primário em meados da década de 70 que usa o método de coincidência. Simultaneamente implantou um sistema de câmara de ionização com câmara poço ou reentrante que opera até hoje e é similar ao sistema de referência do BIPM. Este sistema serve para reter os resultados das comparações chaves e apresenta como característica principal uma ótima estabilidade, sendo um método relativo. Atualmente, o LNMRI possui três sistemas com câmara de ionização tipo poço, um dos quais é dedicado ao programa de comparação de atividade com hospitais.

No início da década de 80, implantou um sistema de espectrometria gama com detector de GeLi, que é fundamental para avaliar as impurezas nos radionuclídeos, atualmente o laboratório de radionuclídeo possui dois sistemas de espectrometria.

Em 1999 implantou o método CIEMAT/NIST, que embora não seja um método direto, pois usa o padrão de ^3H para estabelecer as curvas de eficiência é também utilizado nas comparações chaves. Este sistema encontra-se operacional no laboratório de radionuclídeos.

Nos próximos anos, o LNMRI pretende também implantar o método TDCR para a padronização de emissores que decaem principalmente por captura eletrônica que também é um método primário.

Em relação aos itens b e c, desde 1987 o laboratório de metrologia de radionuclídeos vem participando com êxito nas comparações chaves organizadas pelo BIPM, também conhecidas como CCRI, ou comparações sugeridas pelo Comitê Consultivo de Radiações Ionizantes, participa das comparações do Sistema Interamericano de Metrologia, participa também quando convidado em comparações organizadas pela região metrológica da Europa - EUROMET, atualmente EURAMET e participou de várias comparações chaves organizadas pela região metrológica da Ásia e Pacífico, APMP.

Em relação ao item d, o LNMRI coordena e mantém o Programa Nacional de Intercomparação, PNI, buscando o controle de qualidade e a rastreabilidade metrológica das medições de atividade das análises de amostras ambientais, iniciado em 1991, no qual, participam 22 laboratórios. Com os mesmos objetivos, coordena e executa o programa de comparação de medições de atividade de radionuclídeos integrantes de radiofármacos com a participação de hospitais e serviços de medicina nuclear do Brasil, iniciado em 1999. Neste programa, foram realizadas comparações de medições de ^{99m}Tc , ^{67}Ga , ^{131}I , ^{123}I , ^{201}Tl , utilizando uma rede nacional de metrologia formada por centros regionais localizados em Porto Alegre, Rio, Brasília e Recife.

Mantém um programa de padronização de fontes radioativas nos quais são utilizados métodos diretos e indiretos de medição da grandeza Atividade.

O método universalmente utilizado na padronização da grandeza atividade é o método de coincidência, que se aplica a radionuclídeos que possuem em seus esquemas de decaimento, a emissão de, pelo menos, duas radiações distintas em coincidência, por exemplo, ^{60}Co (ICRU-1994). O sistema de coincidência do LNMRI utiliza, no canal beta, um detector proporcional de fluxo gasoso com geometria 4π alimentado com a mistura dos gases, Argônio (90%) e Metano (10%) comercialmente, denominada de P10, operando à pressão normal e, no canal gama, utiliza um detector de NaI(Tl).

Este sistema de medição é um sistema clássico, no qual os módulos eletrônicos são comerciais e a correção de tempo morto é baseada em tempo morto não estendível. Ele

começou a operar em meados da década de 70 e demorou alguns anos no seu aprimoramento, até tornar-se operacional em estado de arte.

Em sua configuração atual o sistema de coincidência pode operar simultaneamente com a eletrônica do sistema de coincidência e anti-coincidência sem que ocorra interferência. Tal configuração foi realizada durante a padronização do ^{51}Cr e ^{55}Fe . A escolha destes radionuclídeos deveu-se ao fato de que naquela época, 2006 os mesmos, não tinham sido padronizados por métodos primários no LNMRI e para atender o cronograma de trabalho da comparação chave organizada pelo BIPM para o ^{55}Fe .

Devido ao cronograma de trabalho do sistema metrológico internacional no qual o LNMRI está inserido, este trabalho contribuiu com resultados nas seguintes comparações-chaves:

^{55}Fe – Comparação-chave organizada pelo BIPM, CCRI(II)-K2.Fe-55

O objetivo desta comparação-chave foi a determinação da concentração de atividade da solução no período de 2005 e 2006, com a participação de 17 laboratórios.

^{124}Sb - Comparação chave organizada pelo EUROMET. RI(II)- S5.Sb-124

O objetivo desta comparação-chave foi a determinação da concentração de atividade da solução enviada a sete laboratórios que participaram deste exercício, e também a determinação da probabilidade de emissão gama do ^{124}Sb .

^{67}Ga – Comparação-chave organizada pelo Sistema Interamericano de Metrologia.

Na comparação do ^{67}Ga determinação da concentração de atividade da solução padrão. O exercício ocorreu em 2008 e participaram três laboratórios.

Em um projeto de cooperação científica na área de desenvolvimento de métodos de medição entre o LNMRI e o Laboratório Nacional Henry Becquerel, LNHB da França, o laboratório de radionuclídeos recebeu módulos eletrônicos que permitem trabalhar com tempo morto extensível, MTR2 - Modulo de Tempo Morto Extensível (Module de Temps-mort Reconductible, em francês), (BOUCHARD, 2000) e que viabilizam a aplicação na técnica de medição em anti-coincidência. Baseado na técnica de tempo vivo e possuindo um circuito especial que leva em consideração a variação da duração

do sinal de entrada, e evita também uma avaliação errônea do valor do tempo morto causados por exemplo, quando do processamento de pulsos muito saturados (BOUCHARD, 2000), e que torna a correção devido a tempo morto simples e mais seguro.

O método de anti-coincidência é um método complementar ao método de coincidência que foi inicialmente proposto (BRYANT,1962, BRYANT,1967) e que sugere utilizar, como acionamento do circuito de tempo morto, o evento de detecção de uma partícula beta, no caso de um decaimento beta-gama pronto. Isto é o que possibilita estender o método aos radionuclídeos que possuem estado meta-estáveis, e que decaem com a emissão de raios gama retardado.

À idéia inicial de Bryant, foi incorporado o conceito de tempo morto compartilhado para os canais beta e gama (DE CARLOS, 1973). Posteriormente, (BAERG *et al*, 1976) incorporou o uso de tempo vivo ao sistema de anti-coincidência que elimina a correção de tempo morto, utilizando um dispositivo de tempo morto extensível. Com a medição em tempo vivo elimina-se a correção instrumental que é feita automaticamente, tornando o procedimento mais prático e exato. Devido à dificuldade de se encontrar, comercialmente, módulos eletrônicos que trabalhassem com tempo morto extensível (BOUCHARD, 2000), do LNHB, desenvolveu o circuito eletrônico denominado MTR2.

Na presente versão o LNMRI utiliza dois módulos de MTR2 em seu sistema de anti-coincidência. Estes módulos foram introduzidos no laboratório em dezembro de 2005.

A principal vantagem do método de anti-coincidência em relação ao método de coincidência é a possibilidade de se eliminar as correções para efeito Gandy (GANDY, 1961) e coincidências acidentais, necessitando somente correções de tempo morto e radiação de fundo. Para a padronização de emissores que possuam estados meta-estável, e que decaem por meio da emissão de raios gama retardados como o ^{67}Ga , ^{75}Se e ^{85}Sr , este método evita a extrapolação para tempo morto infinito (SANTRY *et al.*, 1987, GARCIA-TORAÑO, 2004), precisando apenas ajustar adequadamente o tempo morto mínimo.

Na etapa preliminar deste trabalho foram feitas, a padronização absoluta da grandeza Atividade por unidade de massa dos seguintes radionuclídeos ^{51}Cr , ^{55}Fe e ^{67}Ga , utilizando o método de anti-coincidência com cronometragem em tempo vivo. Nesta etapa do trabalho foi utilizado no canal beta um detector proporcional de fluxo

gasoso com geometria 4π e um detector de iodeto de sódio no canal gama. Estes resultados foram comparados com os resultados obtidos por outros métodos de medição clássicos: método de coincidência e câmara de ionização. Da análise dos resultados obtidos verificou-se uma boa convergência de resultados, como por exemplo, 0,07 % do valor de referência para o ^{241}Am , e uma convergência de 0,26 % referência para o ^{67}Ga , entre outros, demonstrando a aplicabilidade da técnica de anti-coincidência como método de medição primária para a grandeza Atividade.

Na segunda etapa do trabalho, foi elaborado e construído um novo arranjo de detectores, com nova blindagem para o sistema de anti-coincidência no qual o detector proporcional foi substituído por um detector com cintilador líquido. Esta modificação oferece algumas vantagens em relação ao detector proporcional de fluxo gasoso:

- 1- simplicidade no preparo das amostras;
- 2- custo operacional do sistema relativamente menor pois não necessita de gás de contagem como o argônio metano;
- 3- permitir executar discriminação eletrônica para variação de eficiência no caso dos emissores beta e captura eletrônica;
- 4- redução do tempo gasto em uma padronização primária quando comparado a obtenção da curva da função eficiência obtida por meios convencionais.

Para os testes deste novo sistema de padronização utilizou-se uma solução de ^{241}Am fornecida pelo laboratório nacional alemão Physikalisch Technische Bundesanstalt-PTB, utilizada na última comparação-chave organizada pelo BIPM.

Trabalhos recentes (LU, 2003, BOBIN, 2006) têm demonstrado que o sistema de anti-coincidência 4π CL-NaI(Tl) é uma ferramenta efetiva na padronização de radionuclídeos β - γ , com esquema de desintegração complexos bem como, na padronização de emissores que decaem por captura eletrônica (DA SILVA *et al*, 2008 a).

Um dos maiores desafios encontrados na padronização de radionuclídeos utilizados em medicina nuclear é a sua meia-vida curta que dificulta o seu processo de padronização primária onde é necessário uma amostragem adequada para a redução da incerteza de medição. Decorrem também, dificuldades de outra natureza, como a de

transporte dos radionuclídeos, tempo de desembarço alfandegário, que interferem no processo da participação nas comparações internacionais e, portanto do estabelecimento da rastreabilidade metrológica, devido à baixa atividade que as soluções em estudo chegam ao LNMRI para as medições. Um outro desafio para a metrologia de radionuclídeos é a padronização de radionuclídeos que decaem por captura eletrônica que, chega-se por vezes a valores discrepantes, entre vários métodos de padronização. O que se pretende demonstrar é que o presente sistema atende adequadamente tais exigências de medição de radionuclídeos de meia-vida curta e captura eletrônica, evidenciados durante a padronização do ^{67}Ga , ^{177}Lu , ^{131}I e ^{51}Cr e pode ser utilizado como sistema de padronização primária, complementado os sistemas existentes no laboratório de metrologia de radionuclídeos do IRD.

1.1 Organização do Trabalho

No capítulo 2 são apresentados os fundamentos dos métodos de coincidência e anti-coincidência. No capítulo 3 são apresentados alguns conceitos utilizados em metrologia e um histórico das participações do laboratório de radionuclídeos do IRD em comparações laboratoriais internacionais. No capítulo 4 é apresentada a metodologia aplicada no desenvolvimento trabalho com uma descrição de suas principais etapas. No capítulo 5 são apresentados o procedimento experimental, os principais equipamentos e materiais utilizados durante o trabalho. No capítulo 6 são apresentados os resultados obtidos e a comparação destes resultados com valores de referência. No capítulo 7 são apresentadas as conclusões e, sugestões para trabalhos futuros.

Capítulo 2

REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.0 Evolução dos Métodos de Calibração Absoluta de Radionuclídeos

Neste capítulo serão discutidos os fundamentos dos métodos de calibração absoluta por coincidência e anti-coincidência de radionuclídeos e sua evolução histórica.

2.1 Métodos Primários de Padronização da Grandeza Atividade

Os métodos de padronização primários da grandeza Atividade são também denominados absolutos ou diretos. A definição de método primário de medição é segundo o CCQM (Comité Consultatif pour la Quantité de Matière - métrologie em chimie): um método de medição que possui a mais alta qualidade metrológica cuja operação pode ser completamente descrita e compreendida, para o qual sua incerteza de medição pode ser declarada em termos de unidades SI, e os resultados são aceitos sem precisar estar referenciados a um padrão da grandeza medida.

A definição de um padrão primário segundo o Vocabulário Internacional de Metrologia - VIM:

É um padrão designado ou amplamente aceito como o padrão de mais alta qualidade metrológica e cujo valor é aceito sem estar referenciado a um outro padrão da mesma grandeza.

Atualmente os métodos de medição primários ou diretos representam um consumo de tempo considerável, com procedimentos complexos e que requerem experiência e habilidade do corpo técnico de um laboratório de metrologia (DEBERTIN,1995).

Estes métodos permitem a determinação da atividade por meio apenas das taxas de contagens observadas, sem a determinação prévia de qualquer parâmetro, necessitando, em alguns casos, do conhecimento prévio do modo do decaimento do radionuclídeo em estudo.

O mais poderoso e versátil método de medição direta da grandeza Atividade é o método de coincidência que se aplica a radionuclídeos que decaem pela emissão de duas ou mais radiações em coincidência. Este método permite calcular a eficiência dos dois detectores para as radiações coincidentes e assim, a determinação da atividade do

radionuclídeo em questão. Modificações no método de coincidência resultam nos métodos de anti-coincidência, contagem de correlação e amostragem seletiva que são particularmente aplicáveis a radionuclídeos meta-estáveis que decaem por meio da emissão de raios gama retardados.

Para partículas carregadas de alta energia os detectores proporcionais com geometria 4π permitem a obtenção de alta eficiência de contagem, para amostras preparadas em filmes finos e densidade superficial média de $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ou menores. Tratamentos especiais são ainda requeridos de modo a minimizar a auto-absorção e garantir distribuição homogênea dos cristais da solução radioativa após a secagem das amostras. Nestas condições ideais, pode-se conseguir incertezas de medição entre 0,5 e 1%. Resultados semelhantes podem ser conseguidos com a utilização de detectores com cintiladores líquidos.

O outro método direto é aplicado a radionuclídeos que decaem pela emissão de pelo menos dois fótons em coincidência. Este método requer um detector com eficiência geométrica e intrínseca alta para raios gama. Nestas condições, os dois fótons, ao interagir com o detector ocorrem à detecção destes raios gama como também o fenômeno de soma das energias. Então um terceiro pico aparecerá, cuja energia corresponde à soma das energias dos picos individuais. Com a taxa de contagem de cada pico pode-se determinar a atividade da amostra.

O quarto método primário é conhecido por TDCR, que utiliza a razão de coincidências triplas e duplas. É um método fundamental em cintilação líquida, destinado à calibração de emissores beta e captura eletrônica. É um método primário que necessita de informações detalhadas de esquema de decaimento para o cálculo da eficiência. Este método é baseado em modelos estatísticos e físicos da distribuição dos fótons de cintilação e a probabilidade de detecção em três fotomultiplicadoras dispostas em ângulos de 120° que são posicionadas no interior de uma célula de contagem. Este sistema não é encontrado comercialmente, porém os seus constituintes podem ser adquiridos separadamente. No método TDCR é determinado experimentalmente o parâmetro k que é definido como a razão entre as coincidências triplas e duplas.

$$k = N_T / N_D \quad (2.1)$$

O valor numérico de k está sempre contido no intervalo $0 \leq k \leq 1$, porque a taxa de contagens de coincidências triplas N_T , é sempre menor que a taxa de contagens de coincidências dupla, N_D .

Como a eficiência (ϕ) de contagens aproxima-se de 1

$$\phi \rightarrow 1$$

$$N_T \rightarrow N_0 \quad \text{e teremos que } k \rightarrow 1$$

Por extrapolação para $k = 1$, o valor da atividade, N_0 , com eficiência de contagem $\phi = 1$ pode ser determinada.

Para a determinação da atividade de uma fonte por este método, é necessário obter-se uma série de pares $\{N_T, N_D\}_i$ sob diferentes condições de agente de extinção (BRODA, 2003).

No diagrama de blocos representado na figura 2.1, são utilizados três fotomultiplicadoras (A,B e C). Apresenta três pré-amplificadores representados por (P), três amplificadores (A), três discriminadores (D), quatro portas lógicas (C), umas das quais registra as coincidências triplas(N_T). Um somador (S) onde são integradas as coincidências duplas incluindo as triplas(N_D).

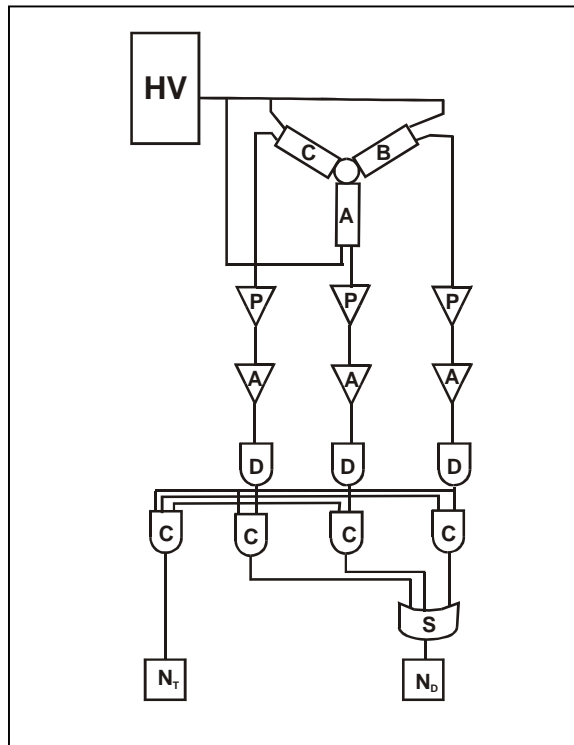


Figura 2.1 Esquema simplificado do Sistema TDCR.

Na aplicação de todos estes métodos salienta-se a necessidade da introdução das correções instrumentais, decaimento e radiação de fundo.

2.2. Método de Coincidência

O método de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ é considerado um método de grande recurso para a medição da grandeza Atividade. É um método direto ou absoluto que não necessita do conhecimento prévio das eficiências dos detectores nem de parâmetros de esquema de decaimento (ICRU-52, 1994).

Para uma cascata simples alfa-gama, ou beta-gama, com cada um dos detectores sensíveis somente a uma radiação, as correções e análises são simples, e com a contagem dos três canais, pode-se determinar todos os parâmetros para a determinação da atividade.

Freqüentemente, estes sistemas usam detectores proporcionais ou cintiladores líquidos para partículas alfa e beta; e cristais de iodeto de sódio ativados com Tálcio, NaI(Tl) ou de germânio para detecção de fótons.

O método de coincidência pode ser aplicado a radionuclídeos que possuem em seu esquema de decaimento duas ou mais radiações em sucessões prontas, ou seja, intervalos de transição entre os eventos devem ser menores que 10^{-10} segundos. Aplica-se a radionuclídeos que decaem por desintegração $\beta\text{-}\gamma$, $\alpha\text{-}\gamma$, $\epsilon\text{-}\gamma$, $\gamma\text{-}\gamma$, $X\text{-}\gamma$ e equivalentes. Em sua concepção básica são necessários dois detectores, um detector proporcional para a contagem beta e eletrônica associada que compõe o canal beta. Um detector de NaI(Tl) ou Ge para a contagem gama e a eletrônica associada que resulta no canal gama. Um terceiro canal de contagem onde são registrados os eventos de coincidências entre os dois canais, resultando no canal de coincidência.

No método de coincidência tradicional, a atividade da fonte pode ser determinada em função das contagens nos três canais, introduzindo as correções relativas ao tempo morto, tempo de resolução, de radiação de fundo, coincidências acidentais e decaimento.

A maior parte das aplicações básicas do método de coincidência está restrita à calibração de radionuclídeos com esquema de decaimento simples (BAERG, 1966). Com modificações técnicas e escolha adequada dos detectores, o método pode estender-

se a um grande número de radionuclídeos, inclusive β puros, utilizando a técnica do traçador. Entre os pesquisadores que utilizaram tal técnica pode-se citar: (CAMPIOM *et al*, 1960, IWAHARA, 1979) entre outros. Correções para esquemas de decaimento complexos e outros efeitos aparecem nas equações básicas do método de coincidência, que envolvem as eficiências dos detectores e os parâmetros nucleares do esquema de decaimento.

Algumas condições são essenciais para aplicação do método de coincidência. A primeira é que um dos detectores deve permanecer estável durante todo o processo de medição, isto é garantido por meio do detector do canal gama. Uma segunda condição é que outro detector possua eficiência geométrica de 4π possibilitando que seja alcançado, no canal β , eficiências próximas a 100%, para o caso de fontes finas, preparadas de solução-mãe sem carreadores. Este segundo detector pode ter a eficiência variada, usando recursos de discriminação eletrônica, da variação da tensão de polarização, adição de filmes absorvedores e aumento da auto-absorção por meio de solução com carreadores inativos.

Para o caso de um esquema de decaimento β - γ simples, cada evento é manifestado através de uma partícula β e um raio gama pronto coincidente em tempo (BAERG, 1966). Considera-se ainda que o detector β , só é sensível a partículas beta e o detector γ gama só sensível a raios gama. Assim, cada evento contado em coincidência resultará em um evento de decaimento. Então para uma fonte puntiforme de atividade por unidade de massa N_0 e eficiência de detecção ϵ_β e ϵ_γ as taxas de contagem nos canais β , γ e de coincidência serão respectivamente,

$$N_\beta = N_0 \epsilon_\beta \quad (2.2)$$

$$N_\gamma = N_0 \epsilon_\gamma \quad (2.3)$$

$$N_c = N_0 \epsilon_\beta \epsilon_\gamma \quad (2.4)$$

Com estas três equações básicas, pode-se determinar o valor de N_0 ,

$$N_0 = N_\beta N_\gamma / N_c \quad (2.5)$$

As eficiências β e γ podem ser também obtidas por meio das taxas de contagem dos respectivos canais, considerando que a fonte é extensa e que o detector proporcional é, em primeira aproximação igualmente sensível, à toda a fonte,

$$\varepsilon_{\beta} = N_c / N_{\gamma} \quad (2.6)$$

$$\varepsilon_{\gamma} = N_c / N_{\beta} \quad (2.7)$$

Entretanto, estas condições ideais raramente são alcançadas (KAWADA, 1972), pois existem vários fenômenos, que obrigam a aplicação de correções. Deste modo deve-se introduzir as correções para que o formalismo se aproxime ao máximo da situação real. Dentre estas correções tem-se, a sensibilidade γ do detector proporcional, o tempo morto do sistema, o tempo de resolução e as coincidências acidentais, além das correções para à radiação de fundo e ao decaimento. Cada uma destas correções serão tratadas no anexo B, e devem ser sempre consideradas. Entretanto, por motivo de simplificação não serão introduzidas no formalismo.

2.2.1. Expressão para o Cálculo da Coincidência β - γ Simples

Considerando um esquema de desintegração β - γ simples e levando-se em consideração elétrons de conversão interna e sensibilidade γ do detector beta, obtém-se a seguinte expressão,

$$N_{\beta} = N_o \left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha \cdot \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.8)$$

$$N_{\gamma} = \frac{N_o \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (2.9)$$

$$N_c = N_o \left[\frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c \right] \quad (2.10)$$

Onde:

- N_o é a atividade da fonte que esta sendo medida;
- N_{β} , N_{γ} e N_c são as taxas de contagem observadas nos canais β , γ e de coincidência, corrigidos para radiação de fundo, decaimento, coincidências acidentais e perdas por tempo morto;
- ε_{β} e ε_{γ} são as eficiências dos detectores β e γ ;
- α é o coeficiente de conversão interna total;

ϵ_{ec} é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão;
 $\epsilon_{\beta\gamma}$ é a eficiência do detector beta aos raios γ ; e
 ϵ_{cr} é a probabilidade de ocorrer uma coincidência fortuita, devido a ocorrência da detecção da radiação de bremsstrahlung no detector gama ou o raio gama ser espalhado no detector gama e ser detectado no detector proporcional.

2.2.2 Esquema de Decaimento Complexo

Quando o radionuclídeo a ser medido tem, no seu esquema de decaimento, vários ramos β e γ , as expressões de cálculo para as taxas de contagem nos canais individuais, tornam-se mais complexas como indicadas pelos seguintes pesquisadores (BAERG, 1966, GRIGORESCU, 1973).

$$N_{\beta} = N_0 \sum a_r \left[\epsilon_{\beta r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \epsilon_{ec} + \epsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (2.11)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum a_r \frac{\epsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (2.12)$$

$$N_c = N_0 \sum \left\{ a_r \left[\frac{\epsilon_{\beta r} \epsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} + (1 - \epsilon_{\beta r}) \epsilon_{cr} \right] \right\} \quad (2.13)$$

Onde:

N_0 é a atividade da fonte que esta sendo medida;
 N_{β} , N_{γ} e N_c são as taxas de contagem observadas nos canais β , γ e de coincidência, corrigidos para radiação de fundo, decaimento, coincidências acidentais e perdas por tempo morto;
 $\epsilon_{\beta r}$ e $\epsilon_{\gamma r}$ são as eficiências dos detectores β e γ para o ramo r do decaimento β .
 a_r é a intensidade β do ramo r ;
 α_r é o coeficiente de conversão interna dos raios γ associado com os ramos com o ramos β_r ;
 $\alpha_{\beta er}$ é a eficiência do detector beta para elétrons de conversão associada com o ramo β_r ;
 $\epsilon_{\beta\gamma r}$ é a eficiência do detector beta aos raios γ associada com o ramo β_r ; e

ε_{cr} é a eficiência de uma coincidência ocorrer, quando a partícula do ramo β_r não é detectada.

2.2.3 Método de Extrapolação da Função Eficiência

Da análise das Equações (2.8), (2.9) e (2.10), do método de coincidência observa-se que a maior parte dos parâmetros do lado direito das equações não é bem conhecida para se calcular o valor de N_o com a exatidão requerida nas aplicações correntes. Estes parâmetros só são determináveis com as três equações, para o caso de esquemas de decaimento simples, nas quais as incógnitas são reduzidas e uma determinação direta do valor de N_o é possível. Estas três equações podem ser agrupadas da seguinte forma:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_o \left(1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} K \right) \quad (2.14)$$

Se a medição no canal gama é realizada sobre o fotopico, $\varepsilon_c \cong 0$. Nesta condição evita-se a possibilidade de detecção da radiação de bremsstrahlung no canal gama (PÉROLAT, 1973). Então K pode ser representado por:

$$K = \frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{(1 + \alpha)} \quad (2.15)$$

Se observarmos a equação 2.14 e fazendo $\varepsilon_\beta \cong N_c/N_\gamma$, conclui-se que se $\varepsilon_\beta \rightarrow 1$, $\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \rightarrow 0$ e $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \rightarrow N_o$.

O termo $\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}$ é denominado atividade aparente e $\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}$ é denominado parâmetro de eficiência.

Quem pela primeira vez propôs estudar a dependência da atividade aparente e o parâmetro de eficiência, e fazer a extrapolação da eficiência beta para 100 % foi (CAMPION, 1959). Este procedimento passou a ser denominado método de extrapolação de eficiência. Posteriormente (BAERG, 1973, MIYAHARA *et al*, 1986) aplicaram também este método demonstrando a sua eficácia. Resultados semelhantes são obtidos quando se estabelece a função de dependência (f) entre a contagem no canal beta N_β e N_c / N_γ que no geral é uma reta.

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

Pode-se variar a eficiência no canal beta por meio da adição de filmes absorvedores sobre a fonte, adicionando soluções com diferentes concentrações de carreadores, ou por meio de discriminação eletrônica.

Salienta-se que tais considerações são aplicadas a emissores beta gama. Para emissores que decaem por captura eletrônica, correções adicionais são requeridas e, desta forma, abordaremos os problemas pertinentes à sua padronização no próximo item.

2.2.3.1 Principais Dificuldades na Aplicação do Método de Extrapolação

As principais dificuldades na aplicação do método de extrapolação estão ligadas à mudança do valor da função extrapolada por algum fenômeno indesejável (KAWADA, 1972):

a) mudança de geometria de medição - normalmente provocada por uma camada de ar entre a fonte e o absorvedor;

b) efeito de má condutibilidade elétrica do filme fino cujas conseqüências são pontos experimentais acima ou abaixo da função extrapolada;

c) nível de discriminação do canal β - os pontos iniciais de discriminação no canal β , em alguns casos, podem sofrer a interferência de pulsos de ruído que mascaram a taxa de contagem. Este tipo de interferência independe do tipo de detector, ocorre com detectores proporcionais, operando à pressão normal, pressurizado e também com cintiladores líquidos principalmente quando se trabalha com baixa energia.

2.3 Padronização de Emissores que Decaem por Captura Eletrônica pelo Método de Extrapolação da Função Eficiência

A determinação da atividade de radionuclídeos que decaem por captura eletrônica é no geral mais complexa do que os radionuclídeos que decaem por beta, devido a baixa eficiência de contagem dos raios X e elétrons Auger, pela captura de elétrons da camada K ou outro elétron de camada superior no detector proporcional do sistema de coincidência. Conseqüentemente, correções de transições gama que podem ser contadas após a conversão interna pelo elétron de conversão ou diretamente pelos

raios gama no detector proporcional são mais importantes do que no caso dos emissores beta. Em função de lacunas na exatidão nos coeficientes de conversão bem como no baixo conhecimento das eficiências de detecção dos elétrons de conversão e raio gama, estas correções são preferencialmente determinadas por cálculo para a extrapolação de eficiência.

A necessidade de correção aplicada na padronização dos emissores que decaem por captura é causado por raio X e elétrons Auger de baixa energia que não são detectados. Elétrons Auger com energias próximas a um keV são igualmente absorvidos no material da fonte, ou no filme suporte, os raios X por outro lado são menos afetados pela absorção, porém não serão contados quando a variação de eficiência por feita por discriminação. Então, para medições com elevado nível de discriminação, a eficiência é praticamente zero para eventos de captura de camadas mais elevadas ou para raio X e elétrons Auger que seguem a conversão L ou M. O mesmo argumento é naturalmente válido para a variação de eficiência feita por absorção.

O efeito destas perdas depende da razão das probabilidades P_k ou P_L para a captura de elétrons da camada K ou L para transições de diferentes estados nucleares do átomo filho. Este valor torna-se importante quando a transição de energia não é apreciavelmente maior que a energia de ligação do elétron. A soma de $P_k + P_L + \dots$ para cada ramo é igual a 1 e se as eficiências correspondentes não são diferentes entre si, a probabilidade de contar o evento de captura são idênticas para cada ramo individual. Como normalmente as eficiências de raio X e elétrons Auger de baixa energia possuem eficiências menores que os raio-x e elétrons Auger da camada K então, nestes casos somente o valor de P_k determinará a probabilidade de contagem $P_k \epsilon_{Xak}$ (ϵ_{Xak} é a probabilidade de contar raio X ou elétron Auger da camada K) do ramo de captura eletônica, e qualquer diferença deste valor para nuclídeos com diferentes ramos dará origem a correção. Quem pela primeira vez determinou este tipo de correção foi (DE ROOST *et al*, 1972) quando estudou o ^{65}Zn .

2.3.1. Decaimento por Captura Eletrônica com um Nível Excitado

Para demonstrar o problema Funk fez inicialmente uma modelagem com um emissor de captura com um nível excitado (FUNK *et al*, 1983). Os ramos para o nível excitado e nível zero são representados por a e b respectivamente na figura 2.2 e (a + b

= 1). A taxa de contagens nos canais beta, gama e coincidência N_{XA} , N_{γ} e N_C são então após as correções habituais de tempo morto, radiação de fundo, coincidências acidentais e que não haja transição convertida.

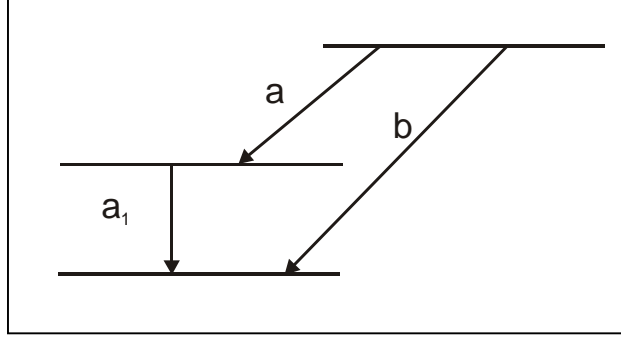


Figura 2.2 Esquema de decaimento com um nível excitado

$$N_{XA} = N_0 (a P_k^a \epsilon_{XAK} + b P_k^b \epsilon_{XAK}) \quad (2.16)$$

$$N_{\gamma} = N_0 a \epsilon_{\gamma a1} \quad (2.17)$$

$$N_C = N_0 (a P_k^a \epsilon_{XAK} \epsilon_{\gamma a1}) \quad (2.18)$$

onde (P_k^a = probabilidade de captura para o ramo a do elétron da camada k e

$P_k^a + P_k^b + \dots = 1$, $\epsilon_{\gamma a1}$ = eficiência gama, N_0 = atividade da fonte e a/b é a razão de probabilidades.

Neste caso é assumido que somente radiações da vacância da camada k é registrada ϵ_{XAK} que é composta das eficiências para raio X e elétrons Auger que podem ser representados pela equação 2.19.

$$\epsilon_{XAK} = \omega_k \epsilon_{XK} (1 - \omega_k) \epsilon_{AK} \quad (2.19)$$

onde ω_k é o rendimento de fluorescência.

Combinando-se as três equações de taxas de contagens nos três canais chega-se a seguinte equação:

$$\frac{N_{XA} N_{\gamma}}{N_c} = N_o \left(1 + b \frac{P_K^b - P_K^a}{P_K^a} \right) \quad (2.20)$$

Uma vez que $P_K^b > P_K^a$ a correção $b \frac{P_K^b - P_K^a}{P_K^a}$ é positiva e, o valor obtido da extrapolação de $\frac{N_{XA} N_{\gamma}}{N_c}$ é maior que N_o .

Quando a transição gama é convertida e radiações provenientes de elétrons captura da camada L não é detectado, a contribuição para a taxa de contagem no detector proporcional dos elétrons de conversão aparecerá de duas formas: via captura eletrônica da camada K e sua detecção incompleta ($\epsilon_{XAK} < 1$) e via captura eletrônica da camada L que é registrada somente por elétrons de conversão da transição gama. A taxa de contagem no canal beta é determinada considerando (α_{a1} = coeficiente de conversão total, $\epsilon_{XAL} = 0$, e a eficiência para elétron de conversão $\epsilon_c = 1$):

$$N_{XA} = N_o \left[a P_K^a \left\{ \epsilon_{XAK} + (1 - \epsilon_{XAK}) \frac{\alpha_{a1}}{1 + \alpha_{a1}} \right\} + a (P_L^a + P_M^a + \dots) + \frac{\alpha_{a1}}{1 + \alpha_{a1}} + b P_K^b \epsilon_{XAK} \right] \quad (2.21)$$

Combinando a equação 2.16 com as equações 2.17 e 2.21 a expressão para a atividade aparente ficará:

$$\frac{N_{XA} N_{\gamma}}{N_c} = N_o \left(1 + b \frac{P_K^b - P_K^a}{P_K^a} + a \frac{1 - P_K^a \epsilon_{XAK}}{P_K^a \epsilon_{XAK}} \frac{\alpha_{a1}}{1 + \alpha_{a1}} \right) \quad (2.22)$$

Na determinação da atividade aparente para diferentes valores de eficiência ($N_c/N_{\gamma} = P_K^a \epsilon_{XAK}$ para raio X e elétrons Auger e extrapolando para eficiência igual a 1, a correção para elétrons de conversão é cancelada.

2.3.2 Decaimento por Captura Eletrônica com Dois Níveis Excitados

Para o radionuclídeo com dois níveis excitados e um nível zero representado na figura 2.3 as equações tornam-se bem mais complexas para a contagem no canal beta.

Detalhes podem ser encontrados em (FUNK,1983). Desta forma vamos transcrever a equação final na condição de extrapolação para a eficiência no canal beta igual a 1.

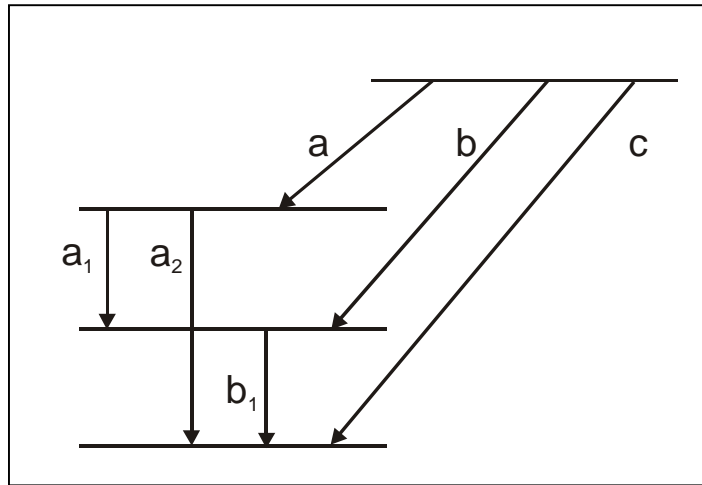


Figura 2.3 Esquema de decaimento com dois níveis excitados

$$\frac{N_{XA} N_{\gamma}}{N_c} = N_o \left(1 + b \frac{P_K^b - P_K^a}{P_K^a} \frac{1}{1 + \alpha_{b1}} + c \frac{P_K^c - P_K^a}{P_K^a} \right) \quad (2.23)$$

2.3.3. Fatores de Correção para Alguns Radionuclídeos Usuais

Com base nestes modelos de esquema de decaimento e as equações estabelecidas anteriormente correções para para L-X e Auger-L, raio X da camada M bem como elétrons Auger foram determinados por Funk. Estes valores foram recalculados tomando por base dados mais atualizados de esquema de decaimento (BÉ, 2004) e são apresentados na tabela 2.1.

Tabela 2.1 Fator de correção para elétrons de conversão e raio X de baixa energia.

Radionuclídeo	Discriminação Canal beta	F (Funk)	F (Este trabalho)	ε(%)
⁵¹ Cr	0,6 (L)	0,9989	0,9991	0,02
⁶⁵ Zn	1,0(L)	0,9967	0,9968	0,01
⁶⁷ Ga	1,0 (L)	0,9996	0,9998	0,02
²⁰¹ Tl	2,5(M)	0,9908	0,9902	0,06

Então na aplicação do método de extrapolação para os radionuclídeos que decaem por captura eletrônica o fator de correção deve ser aplicado na atividade aparente na condição limite em que $N_c/N_\gamma \rightarrow 1$ (FUNK,1983), ou seja:

$$N_o = \lim_{N_c/N_\gamma \rightarrow 1} \left(\frac{N_{XA} N_\gamma}{N_c} \right) \cdot F \quad (2.24)$$

2.3.4 Expressões para o Cálculo da Atividade pelo Método de Coincidência

Existem vários formalismos que foram propostos por diferentes pesquisadores para o cálculo da atividade pelo método de coincidência, entre eles salientam-se (CAMPION, 1959, COX, 1977). O trabalho de Cox do Colégio Imperial, Londres, resultou em um formalismo proposto em 1978 (SMITH, 1978) que gerou uma expressão denominada de fórmula de Cox-Isham. Este formalismo, encontra grande aceitação e oferece ótima consistência de resultados, mesmo no caso em que os valores de tempo morto nos canais β e γ sejam diferentes. O programa de cálculo utilizado no laboratório de metrologia do LNMRI denominado Coin, utiliza a expressão de Cox-Isham, para o cálculo da atividade N_o , por unidade de massa. Esta equação esta representada no anexo B.

2.4 Método de Anti-Coincidência

Enquanto a contagem de coincidência convencional para determinação da desintegração de fontes radioativas constitui um método bem estabelecido, algumas dificuldades práticas ainda permanecem como a correção de tempo morto quando se trabalha com elevadas taxas de contagem. O método também é limitado para emissores que decaem pela emissão de estados nucleares meta-estáveis ou isoméricos para os quais os métodos de anti-coincidência e a contagem de correlação são mais indicados (BAERG-1976). Contudo, com estes métodos as dificuldades relativas ao tempo morto também permanecem.

Uma das tentativas de contornar tal problema de cronometragem associado ao tempo morto, tempo de resolução e também trabalhar com estados nucleares meta-estáveis é utilizar a cronometragem em tempo vivo, combinado com a contagem em

anti-coincidência, na qual todos os princípios utilizados em contagem de coincidência permanecem.

Quando a meia-vida do estado excitado é da ordem ou maior que o tempo de resolução do circuito de coincidência, uma significativa perda de coincidências genuínas ocorrerá. O aumento do tempo de resolução para compensar as perdas é limitado pelo aumento das coincidências acidentais. Por conseguinte, a aplicação da contagem em coincidência será em geral reservada para radionuclídeos que decaem prontamente ou seja, $< 10^{-10}$ s.

Para radionuclídeos que decaem pela emissão de raios gama retardados a contagem em anti-coincidência é mais indicada principalmente quando se elimina interferências tais como o efeito Gandy (FUNK,1981). O método de anti-coincidência como uma alternativa ao método de coincidência foi sugerido pela primeira vez por Bryant (BRYANT,1962) para decaimento beta-gama pronto e posteriormente aplicado ao caso de emissores que possuem estados meta-estáveis com a emissão de radiação gama retardada (BRYANT,1967).

Com a contagem em anti-coincidência, os raios gama não correlacionados com as partículas beta, são contados e a taxa de contagem no canal de coincidência pode então, ser obtida por subtração, entre a taxa de contagem gama total, e a taxa de contagem não correlacionada. Com a introdução da técnica de cronometragem em tempo vivo, este método possui as vantagens na eliminação de correções instrumentais bem como permitir trabalhar com estado que emite radiação gama retardada.

Na aplicação do método proposto por Bryant ao decaimento beta-gama pronto, somente aqueles sinais provenientes de eventos gama, que precedem ou sucedem sinais provenientes de eventos beta em um intervalo maior que T , são aceitos como eventos gama em anti-coincidência. Isto pode ser conseguido pela introdução de um atraso no sinal do canal gama, e fechando simultaneamente a porta de anti-coincidência no canal gama durante um intervalo de tempo $2T$ após o registro do sinal de cada evento beta.

Usando-se o método para o decaimento beta seguido da emissão de raios gama retardados adiciona-se um tempo τ , ao intervalo de tempo $2T$ necessário a aplicação do método ao decaimento β - γ pronto. Fazendo $T+\tau$ igual a m meias-vidas do estado retardado, a probabilidade de contagem de eventos coincidentes não desejados pode ser

reduzida a qualquer limite de 2^{-m} (BRYANT,1967), (SANTRY *et al*, 1987), (DA SILVA *et al*, 2008 a).

2.4.1 Princípio e Realização

Com o método de anti-coincidência, aplicado ao decaimento $\beta-\gamma$, as taxas de contagem de cada detector serão N_β e N_γ respectivamente, contadas juntamente com os eventos gama não correlacionados aos eventos β detectados. Então, a contagem em anti-coincidência é complementar à técnica de coincidência.

As taxas de contagem nos três canais podem ser representadas pelas seguintes equações:

$$N_\beta = N_0 \sum a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (2.25)$$

$$N_\gamma = N_0 \sum a_r \frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_r} \quad (2.26)$$

$$N_{anc} = N_0 \sum a_r \left[(1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (2.27)$$

Onde:

N_0 é a atividade da fonte que esta sendo medida;

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

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

a_r é a intensidade β do ramo r ;

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

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

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

A taxa de contagem em anti-coincidência N_{anc} pode ser obtida diretamente da taxa de contagem gama total N_γ e da taxa de contagem em coincidência N_c , sendo representado pela equação 2.28.

$$N_{anc} = N_\gamma - N_c \quad (2.28)$$

A atividade da amostra pode então ser determinada e a eficiência usando as equações abaixo:

$$N_c = A \epsilon_\beta \epsilon_\gamma \quad (2.29)$$

e

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \quad (2.30)$$

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

No caso da emissão de raio gama retardado, é necessário somente que o canal de contagem gama permaneça fechado por um intervalo de tempo adicional δ , após a detecção da partícula beta do decaimento β - γ pronto. Então a probabilidade de se detectar algum evento coincidente é reduzido a um valor tão pequeno quanto possível dentro das condições práticas de 2^m , considerando $(2\delta + \delta)$ igual a m meias-vidas do estado intermediário. O maior limite prático para a meia-vida de um estado isomérico é provavelmente algumas dezenas de μs , determinado pela estatística de contagem, porque uma longa meia-vida requer um grande período fechado para a porta do canal de anti-coincidência e por conseguinte uma baixa taxa de contagem se as perdas devido a tempo morto permanecerem pequenas.

2.4.2 Correções Aplicadas ao Método de Anti-Co incidência

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

$$N_{\beta} = \frac{N'_{\beta}}{1 - \tau_{\beta} N'_{\beta}} - b_{\beta} \quad (2.31)$$

Onde:

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

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

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

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

E para o canal gama:

$$N_{\gamma} = \frac{N'_{\gamma}}{1 - \tau_{\gamma} N'_{\gamma}} - b_{\gamma} \quad (2.32)$$

Onde:

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

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

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

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

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

$$N_{anc} \approx \frac{N'_{anc}}{1 - N'_{\beta} (\tau_{\beta} + 2\delta)} - b_{anc} \quad (2.33)$$

Onde:

N_{anc} taxa de contagem anti-coincidência real;
 N_{anc} taxa de contagem anti-coincidência observada;
 N_{β} taxa de contagem no canal beta; e
 b_{anc} taxa de contagem de radiação de fundo.

Bryant assume tempo morto não estendível nos canais individuais e o “gate” ou entrada de contagem fechada por um intervalo de tempo igual a duas vezes o atraso introduzido na via gama mais a flutuação de tempo morto na via beta após a detecção de cada partícula beta.

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

$$N_{anc} \approx \frac{N_{anc}' (1 + N_{\beta} \tau_{\beta})}{\exp(-N_{\beta} (2\delta + \delta')) - N_{anc}' \tau_{\gamma} (1 + N_{\beta} \tau_{\beta})} - b_{anc} \quad (2.34)$$

Onde:

N_{anc} taxa de contagem anti-coincidência real;
 N_{anc} taxa de contagem anti-coincidência observada;
 N_{β} é a taxa de contagem no canal beta;
 b_{anc} é a taxa de contagem de radiação de fundo no canal de anti-coincidência;
 τ_{γ} é o valor numérico do tempo morto no canal gama;
 τ_{β} é o valor numérico do tempo morto no canal beta;
 δ é o valor numérico do atraso da via gama; e
 δ' é m vezes a meia-vida do estado isomérico.

A equação 2.34 pode ser representada pela equação 2.35 na qual os termos tem o seguinte significado (ICRU-52,1994):

$$N_{anc}' \approx N_{anc} \frac{\exp[-N_{\beta} (2\delta + \delta')]}{1 + N_{\beta} \tau_{\beta}} \frac{1}{1 + N_{anc}' \tau_{\gamma}} - b_{anc} \quad (2.35)$$

O primeiro termo representa a probabilidade do canal de anti-coincidência estar aberto e, o segundo a probabilidade do canal gama estar ativo. A probabilidade do canal de anti-coincidência estar aberto é o produto da probabilidade do canal beta estar ativo e ter estado ativo por um período de tempo igual a $2\delta + \delta'$. Onde 2δ duas vezes o atraso introduzido no canal gama e δ' m vezes a meia-vida do estado isomérico.

2.4.3 Contagem de Anti-Coincidência em Tempo Vivo

Como a correção de tempo morto para o canal de anti-coincidência é bastante difícil de ser estabelecida de forma a garantir uma boa exatidão dos resultados, a contagem em tempo vivo tem sido introduzida, utilizando na configuração do sistema, um circuito com tempo morto extensível. Em princípio é esperado que com a contagem em tempo vivo são eliminadas todas as correções instrumentais. Este método consiste inicialmente em atrasar os sinais gama, relativamente aos sinais beta, de um valor maior do que qualquer flutuação em tempo dos sinais beta-gama. Então ambos os sinais lógicos, beta e gama dispararão um circuito gerador de tempo morto extensível. Este atraso τ é ajustado de forma a ter um valor maior que todo o atraso ou flutuação de tempo entre os sinais beta-gama, no geral τ é fixado entre 2 e $4 \mu s$. Deste modo os pulsos de saída deste circuito são aplicados como sinal de chaveamento que bloqueia a cronometragem de tempo vivo bem como, a entrada de sinais nos canais beta e gama. Um atraso de $5 ns$ entre o disparo e o acionamento das portas é devido ao circuito acionador do tempo morto.

2.4.3.1 Princípio do Tempo Vivo

A técnica de contagem em tempo vivo é utilizada para compensar automaticamente enquanto alguma parte do sistema de contagem é incapaz de aceitar novos eventos, em geral quando um analisador multicanal está ocupado ou algum outro evento que provoque tempo morto. O tempo vivo é acompanhado pelo ato de interromper um relógio ou, na prática, pelo fechamento de uma porta entre um trem de pulsos e este registro no qual o sistema não está habilitado a registrar novos pulsos.

Para geração do tempo vivo, o sistema de anti-coincidência do LNMRI, utiliza um oscilador a quartzo de 1 MHz como referência de tempo. Quando o sistema está apto a

contar um pulso na entrada do MTR2, gera um tempo morto mínimo e simultaneamente envia um sinal ao contador para que a contagem C seja registrada. O circuito de tempo morto é acionado a cada chegada de um novo pulso na entrada do MTR2. Deste modo o tempo T_a que o sistema está livre pode ser descrito pela equação 2.36.

$$T_a = \left(\frac{F}{F_{ref}} \right) - C.d \quad (2.36)$$

Onde:

F_{ref} é a frequência de referência;

F é o número de pulsos contados proveniente do oscilador enquanto o canal está ativo, que representa o intervalo de tempo no qual o sistema não está paralisado pelo tempo morto;

C é a contagem durante o período de amostragem;

d é a largura do pulso; e

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

Para reduzir tal correção a largura do pulso gerado pelo MTR2 é fixado em 5 ns . Por conseguinte a taxa de contagem real será representada pela equação 2.37.

$$N = C / T_a \quad (2.37)$$

A atividade de um dado radionuclídeo pode ser determinada pela equação clássica do método de coincidência, e que difere no método de anti-coincidência, apenas na taxa de contagem N_c , que neste caso para uma dada janela de contagem gama, é determinada como a diferença entre a taxa de contagem gama total e a taxa de contagem gama de eventos não correlacionados, ou que não estejam em coincidência, que pode ser representada pela equação (2.38).

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma^w}{N_\gamma^w - N_\gamma^{wnc}} \quad (2.38)$$

Onde:

N_β é a taxa de contagem no canal beta corrigida para radiação de fundo;

N_γ^w é taxa de contagem gama na janela corrigida para radiação de fundo; e

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

2.5 Método do Traçador

Para a padronização de emissores beta puros utiliza-se o artifício de misturá-los a um emissor beta-gama. O emissor beta-gama recebe o nome de traçador. Este método tem como fundamento teórico o princípio de que existe uma relação linear entre a eficiência do traçador e a eficiência do emissor beta puro.

2.5.1 Condições Necessárias para a Aplicação do Método do Traçador

- a- O traçador deve ser escolhido de forma a atender a similaridade de espectro e as energias máximas não devem diferir de um fator 2.
- b- Deve existir uma relação linear entre as eficiências de contagem do traçador e do emissor beta;
- c- É essencial que os radionuclídeos estejam uniformemente distribuídos na amostra a ser padronizada.

Na primeira proposta de aplicação do método do traçador foi postulado a necessidade do emissor beta e o traçador formarem um composto; o que é difícil de ser conseguido na prática. A variação de eficiência era obtida por meio de deposição em cada amostra de concentrações distintas do carreador inativo.

Para contornar algumas dificuldades práticas (BAERG *et al*, 1964) demonstrou que este método poderia ser aplicado em fontes preparadas em filmes de VYNS com distribuição uniformes de cristais, nas quais a variação de eficiência era obtida por colagem de filmes absorvedores. Então sobre as fontes finas de duas espécies de radionuclídeos são colados absorvedores de modo a obter-se a função eficiência beta que é extrapolada para 100%. Conhecendo-se a atividade do traçador e por meio de subtração obtêm-se a atividade por unidade de massa do emissor beta.

Uma outra forma de obter a função eficiência, utilizada neste trabalho, é a discriminação eletrônica que, para o caso dos detectores proporcionais só é aplicada a emissores que decaem por captura eletrônica quando os eventos são de energias baixas.

Na padronização do ^{55}Fe foi utilizada a equação (2.39), (RYTZ, 1980, SMITH , 1982) para a determinação da atividade por unidade de massa:

$$N_{\beta} = \left[\left(\left(\frac{N_{\beta}}{\Delta t} - \frac{B_{\beta}}{\Delta t_{\beta}} \right) - \left(A_{\text{Mn}54} \times m_{\text{Mn}54} \times \varepsilon \left(\exp - \frac{\ln 2 \times \Delta t_{\text{Mn}54}}{T_{1/2\text{Mn}54}} \right) \right) \right) \right] \left(\exp \frac{\ln 2 \times \Delta t_{\text{Fe}55}}{T_{1/2\text{Fe}55}} \right) \frac{1}{m_{\text{Fe}55}} \quad (2.39)$$

Onde:

N_{β}	contagem no canal beta;
B_{β}	contagem de radiação de fundo no canal beta;
Δt	tempo de contagem da amostra;
Δt_{β}	tempo de contagem da radiação de fundo;
$A_{\text{Mn}54}$	concentração de atividade do ^{54}Mn ;
$m_{\text{Mn}54}$	massa de ^{54}Mn na amostra;
$\varepsilon = N_c / N_{\gamma}$	eficiência no canal beta;
$\Delta t_{\text{Mn}54}$	intervalo de tempo entre a data de referência e a data de medição - ^{54}Mn ;
$T_{1/2 \text{Mn}54}$	meia-vida do ^{54}Mn ;
$\Delta t_{\text{Fe}55}$	intervalo de tempo entre a data de referência e a data de medição - ^{55}Fe ;
$T_{1/2\text{Fe}55}$	meia-vida do ^{55}Fe ; e
$m_{\text{Fe}55}$	massa de ^{55}Fe na amostra.

2.6 Determinação das Incertezas de Medição

A incerteza de medição de um resultado geralmente consiste de várias componentes que podem ser agrupadas em duas categorias:

Categoria A - são incertezas determinadas pela aplicação de métodos estatísticos.

Categoria B- são aquelas determinadas por outros métodos.

Um relatório detalhado da incerteza deve consistir de uma lista completa das componentes que afetam o processo de medição, especificando para cada componente o procedimento aplicado na obtenção do seu valor numérico.

As componentes de incerteza categoria A do método de coincidência e anti-coincidência são constituídas pela dispersão estatística e pela incerteza no ajuste da curva de extrapolação.

A composição das incertezas categoria A se faz de forma quadrática.

2.6.1 Componentes de Incerteza do Tipo B

2.6.1.1 Componentes de Incerteza do Tipo B - Método de Coincidência

- 1- Tempo morto
- 2- Tempo de resolução
- 3- Massa da amostra
- 4- Meia-vida
- 5- Radiação de fundo
- 6- Flutuação do retardo β - γ (efeito Gandy)

2.6.1.2 Componentes de Incerteza do Tipo B - Método de Anti-Coincidência

- 1- Tempo vivo
- 2- Massa
- 3- Meia-vida
- 4- Radiação de fundo

2.6.2 Incerteza Padrão Combinada

A incerteza padrão combinada é obtida por meio da composição quadrática das incertezas tipo A e B.

$$u_c^2(y) = \sum_1^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(X_i) \quad (2.40)$$

2.6.3 Incerteza Padrão Expandida

Para obter-se a incerteza padrão expandida U , multiplica-se a incerteza combinada u_c pelo fator de abrangência k . Neste trabalho foi utilizado $k=1$, correspondente a um intervalo de confiança de 68,3 % .

$$U = k u_c \quad (2.41)$$

Capítulo 3

ALGUNS CONCEITOS UTILIZADOS EM METROLOGIA

3.0 Fundamentos da Metrologia

Neste capítulo serão discutidos as bases da metrologia internacional e os fundamentos da metrologia de radionuclídeos.

3.1 A Convenção do Metro

A Convenção do Metro é um tratado de base diplomática que deu autoridade a Conferência Geral de Pesos e Medidas (CGPM) e ao Comitê Internacional de Pesos e Medidas (CIPM) para atuar na área da metrologia mundial, particularmente em relação à demanda por padrões de medição, aumento da exatidão, faixa de medição, diversidade, e necessidade de demonstrar a equivalência entre os padrões nacionais de medição.

A convenção do metro foi assinada em 1875 por representantes de dezessete países. Ela também criou o BIPM, estabeleceu as bases para que as suas atividades fossem financiadas, e também uma permanente estrutura organizacional para que membros de governos atuassem em comum acordo em todas as matérias relativas a unidades de medição.

A convenção foi modificada em 1921, mas as bases do acordo internacional de unidades de medição permaneceram. Atualmente, existem cinquenta e um países membros da convenção, incluindo os países mais industrializados.

3.2 Arranjo de Reconhecimento Mútuo

O Arranjo de Reconhecimento Mútuo (Mutual Recognition Arrangement- MRA) do Comitê Internacional de Pesos e Medidas foi assinado em 1999 pelos institutos nacionais de metrologia de vários países. Atualmente somam 45 signatários envolvendo 117 institutos de metrologia e 2 organizações internacionais (BIPM KCDB Nesletter, 2008). Os objetivos principais do MRA são:

- a) garantir elevada confiabilidade e conhecimento da capacidade de medição dos Institutos Nacionais de Metrologia- INMs, particularmente para a comunidade regulatória e de acreditação;

- b) melhorar a realização dos padrões nacionais nos INMs, particularmente novos INMs com menos experiência;
- c) suprir o suporte técnico para acordos comerciais, e equivalência de certificados de calibração aceitos mundialmente;
- d) reduzir barreiras técnicas ao comércio, causados por lacunas em rastreabilidade e equivalência de medições.

O MRA pode ser dividido em duas partes:

Parte 1- Reconhecimento mútuo do grau de equivalência dos padrões nacionais de medição mantidos pelos institutos nacionais de metrologia baseado nos resultados das comparações-chaves organizadas pelo Comitê Internacional de Pesos e Medida - CIPM e pelas organizações regionais de metrologia (Regional Metrology Organisation- RMO).

Parte 2- Reconhecimento mútuo dos certificados de calibração publicados pelos institutos nacionais de metrologia baseados na capacidade de medição e calibração (CMCs) que passaram por avaliação de pares internacionais e que são suportadas por sistema da qualidade.

A capacidade de medição de cada instituto nacional de metrologia é compilada em uma base de dados mantida pelo BIPM, fundamentada no desempenho nas comparações chaves.

3.3 Rastreabilidade Metrológica

O termo rastreabilidade é uma tradução para “traceability” que não era um termo bem aceito em ciência quando começou a ser utilizado. Contudo, com o sentido de demonstrar a hierarquia existente no sistema metrológico ou ilustrar a ausência de quebra na cadeia de medição tornou-se perfeitamente adequado.

A definição do vocabulário internacional de termos fundamentais e gerais de metrologia-VIM conceitua rastreabilidade metrológica como: a propriedade do resultado de uma medição ou valor de um padrão, estar relacionado a referências estabelecidas, geralmente a padrões nacionais ou internacionais, através de uma cadeia contínua de comparações, todas tendo incertezas estabelecidas.

O conceito é geralmente expresso pelo adjetivo rastreável no sentido de demonstrar a ligação e a hierarquia entre os padrões.

Para garantir a rastreabilidade metrológica de suas medições, o Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), do IRD, participa, desde 1987, de programas de comparação organizados pelo BIPM e submete, periodicamente, soluções radioativas padronizadas ao Sistema Internacional de Referência para emissores gama (SIR/BIPM). Participa também, como convidado, de comparações organizadas pelas várias organizações regionais de metrologia tais como: Sistema Interamericano de Metrologia (SIM) ao qual pertence, EURAMET e APMP, das regiões Européia e Asiática, respectivamente.

Para estabelecer a rastreabilidade e fazer o controle de qualidade das medições de atividade no país, o LNMRI promove dois programas de comparações, tendo como participantes os laboratórios de análises de amostras ambientais e os serviços de medicina nuclear. Desde 1989, promove comparações laboratoriais de medição de atividade em amostras ambientais. Neste programa, são efetuadas três rodadas de comparações por ano, nos quais participam 22 laboratórios e onde são analisados 24 radionuclídeos em amostras com diferentes tipos de matrizes. Um outro programa de comparação laboratorial organizado pelo LNMRI é concernente à medição de atividade de radionuclídeos utilizados em medicina nuclear. Este programa foi iniciado em 1998, e entre os principais radionuclídeos medidos cita-se o ^{67}Ga , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{201}Tl , ^{123}I e ^{131}I .

Uma cadeia contínua de comparações é denominada de cadeia de rastreabilidade, a Figura 3.1 ilustra o diagrama de rastreabilidade metrológica do LNMRI.

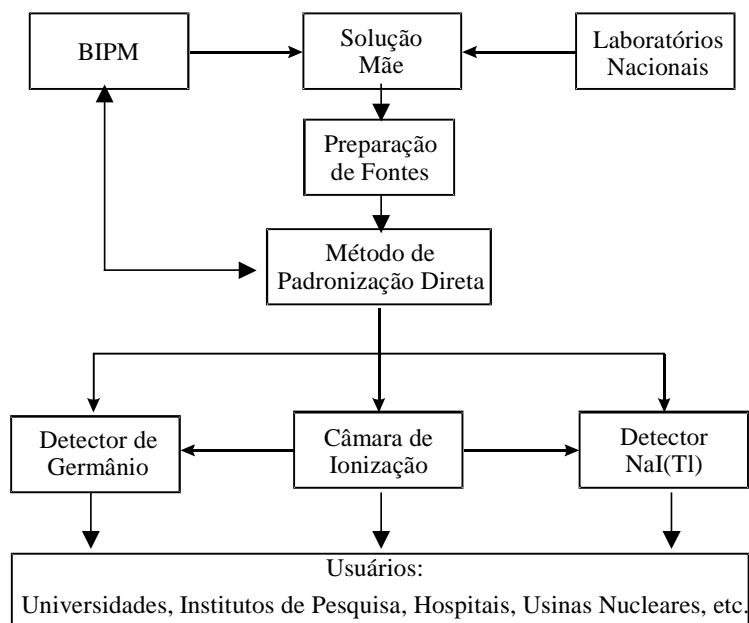


Figura 3.1 – Diagrama de rastreabilidade metrológica adotado pelo LNMRI

3.3.1 Comparações-Chaves

Comparações interlaboratoriais são concebidas na forma de programas de colaboração promovidos por órgãos governamentais nacionais ou internacionais com o objetivo de estabelecer procedimentos de medição, determinar o valor de referência de uma grandeza, desconhecida ou confirmar o valor já estabelecido. O programa mais tradicional de rastreabilidade em medição de atividade de radionuclídeos é o organizado pelo BIPM, pela abrangência dos laboratórios participantes.

O Comitê Consultivo de Radiações Ionizantes – CCRI do BIPM que se reúne à cada dois anos, analisa e propõe ao CIPM exercícios de comparações-chaves na área de radiações ionizantes. As comparações-chaves são identificadas pelo organismo que organizou o exercício, por exemplo, CCRI do BIPM, ou pelas regiões metrológicas, Sistema Interamericano de Metrologia SIM, ou EURAMET – região metrológica da Europa ou APMP região metrológica da Ásia e Pacífico. Recebe ainda a letra K de comparação-chave, acrescida dos números, *II*, que corresponde à seção de radionuclídeos; adicionam-se também as letras *s* e *p* respectivamente para comparações *suplementares* ou estudo *piloto*; recebem ainda numeração de 1 a 6 em ordem seqüencial. A tabela 3.1 lista as participações do LNMRI nas principais comparações chaves.

Tabela 3.1 Participação do LNMRI em Comparações Chaves da Grandeza Atividade

Radionuclídeo	Ano	Denominação
^{125}I	1988	CCRI(II)-K2.I-125
^{75}Se	1992	CCRI(II)-K2.Se-75
^{169}Yb	1997	EUROMET.RI(II)-K2.Yb-169
^{152}Eu	1999	CCRI(II)-K2.Eu-152
$^{166}\text{Ho}^{\text{m}}$	1999	APMP.CCRI(II)-K2.Ho-166m
^{88}Y	2000	CCRI(II)-K2.Y-88
^{58}Co	2000	APMP.CCRI(II)-K2.Co-58
^{89}Sr	2000	CCRI(II)-K2.Sr-89
^{65}Zn	2002	CCRI(II)-K2.Zn-65
^{32}P	2002	CCRI(II)-K2.P-32
^{204}Tl	2002	CCRI(II)-K2.Tl-204
^{192}Ir	2002	CCRI(II)-K2.Ir-192
^{54}Mn	2003	CCRI(II)-K2.Mn-54
^{241}Am	2003	CCRI(II)-K2.Am-241
^{125}I	2004	CCRI(II)-K2.I-125
^{139}Ce	2004	CCRI(II)-K2.Ce-139
^{55}Fe	2005	CCRI(II)-K2.Fe-55
^{131}I	2006	CCRI(II)-S6.I-131
^{124}Sb	2007	EUROMET.RI(II)-K2.Sb-124
^{57}Co	2008	CCRI(II)-S6.Co-57

^{67}Ga	2008	CCRI(II)-S2.Ga-67
------------------	------	-------------------

3.3.2 Sistema Internacional de Referência para Emissores Gama

O Sistema Internacional de Referência, SIR foi criado com o objetivo de complementar e estender as comparações internacionais de atividade organizadas pelo BIPM. A missão do SIR é manter a coerência mundial em medições de atividade, melhorar a exatidão destas medições e manter um controle de qualidade dos padrões de atividade nacionais. Neste sistema de referência o laboratório participante submete soluções calibradas de um radionuclídeo ao BIPM, onde a corrente produzida em uma câmara de ionização estável é comparada, por substituição, à corrente produzida por uma fonte de ^{226}Ra de referência de alta pureza (RYTZ, 1983). Desta razão conhecida como fator de calibração a atividade por unidade de massa da amostra é calculada.

Assim são listados periodicamente, os valores obtidos nas submissões dos vários laboratórios nacionais que participam do programa, e esses dados são publicados e divulgados entre os laboratórios nacionais. É natural que os resultados deste sistema sejam dependentes da qualidade do trabalho dos laboratórios participantes. Este sistema não supera o trabalho das comparações internacionais, mas serve principalmente para complementá-las e ajudar a estender a rastreabilidade metrológica a laboratórios iniciantes nesta área da metrologia das radiações ionizantes. A tabela 3.2 ilustra a participação do LNMRI no estabelecimento da rastreabilidade metrológica por meio do Sistema Internacional de Referência.

Tabela 3.2 Participação do LNMRI no Sistema Internacional de Referência

Radionuclídeo	Ano	Denominação
^{60}Co	1985	CCRI(II)-K1.Co-60
^{134}Cs	1987	CCRI(II)-K1.Cs-134
^{57}Co	1991	CCRI(II)-K1.Co-57
^{152}Eu	1995	CCRI(II)-K1.Eu-152
^{133}Ba	1995	CCRI(II)-K1.Ba-133
^{139}Ce	1997	CCRI(II)-K1.Ce-139
^{131}I	1999	CCRI(II)-K1.I-131
^{192}Ir	1999	CCRI(II)-K1.Ir-192
^{51}Cr	2006	CCRI(II)-K1.Cr-51

Capítulo 4

METODOLOGIA

4.0 Resumo da Metodologia

Este trabalho foi desenvolvido em duas fases: Inicialmente foi testado a implantação da técnica de contagem em anti-coincidência utilizando o arranjo de detectores utilizados no sistema de coincidência do laboratório de radionuclídeos do LNMRI. Nesta primeira fase foi desenvolvido um algoritmo de cálculo utilizando planilha Excel para a aplicação do método de anti-coincidência o qual foi aplicado na padronização do ^{51}Cr e ^{67}Ga . Na padronização do ^{51}Cr o sistema de coincidência e o sistema de anti-coincidência operaram simultaneamente ou seja a cada medida das amostras eram aplicados os dois métodos de medição. Nesta primeira etapa foi feita ainda padronização do ^{55}Fe .

Na segunda etapa, foi projetada uma nova blindagem, e o detector proporcional foi substituído por um detector com cintilador líquido. Nesta etapa o novo sistema de medição foi testado com a padronização do ^{241}Am . Posteriormente foi feita a padronização do ^{131}I , ^{124}Sb e ^{177}Lu .

4.1 Aquisição de Dados

Na etapa preliminar do trabalho foi feito a contratação de um serviço para montar uma interface para coletar os dados de contagem do sistema de anti-coincidência utilizando a placa IEE-488. Foi feito ainda um programa para controle e aquisição de dados utilizando Labview.

4.2 Oscilador a Cristal

Foi montado um oscilador a cristal de quartzo com frequência de referência de 1 MHz que é utilizada para gerar a base de tempo do sistema de anti-coincidência.

4.3 Testes Preliminares com os Módulos MTR2

Para tornar o sistema operacional, fez-se a interligação dos módulos MTR-2 fornecidos pelo Laboratório Nacional Henry Becquerel-LNHB, ajustes e medição de fonte sólida de ^{60}Co fornecida pelo BIPM.

Nesta etapa do trabalho tivemos a visita científica do Dr. Bobin do LNHB que nos deu assistência técnica quanto ao funcionamento dos módulos e a sua aplicação no sistema de anti-coincidência.

4.4 Algoritmo de Cálculo em Excel

Baseado em notas pessoais do Dr Bobin do LNHB e (BOUCHARD, 1996) foi desenvolvido um algoritmo de cálculo em Excel para o cálculo da concentração de atividade pelo método de anti-coincidência. Em seguida foi feita a comparação dos resultados obtidos pela planilha excel com o programa de cálculo do LNHB que apresentaram resultados equivalentes.

4.5 Medição do ^{67}Ga

Para verificar a aplicabilidade do método de anti-coincidência foi feita a padronização de uma solução de ^{67}Ga que apresenta em seu esquema de decaimento o estado meta-estável de 9,1 μs . Foi utilizado na medição do ^{67}Ga os detectores do sistema de coincidência.

4.6 Medição do ^{51}Cr e ^{55}Fe

Ainda como teste de verificação foi feita a padronização do ^{51}Cr utilizando os detectores do sistema de coincidência. Nesta etapa foram aplicados simultaneamente os método de coincidência e o de anti-coincidência. A instrumentação nuclear operou de forma independentemente, com módulos distintos.

Posteriormente, visando atender a comparação internacional organizada pelo BIPM, foi feita a padronização do ^{55}Fe utilizando o ^{54}Mn como traçador uma vez que o ^{55}Fe não possui radiações coincidentes em seu esquema de desintegração.

4.7 Desenvolvimento de Projeto de Blindagem e Célula Cintiladora

Foi desenvolvido com a cooperação do setor de engenharia do IRD, a blindagem, a célula cintiladora e os suportes necessários para a fixação dos detectores do sistema de anti-coincidência.

4.8 Testes do Sistema de Anti-Coincidência com Detector com Cintilador Líquido

Para testar o novo sistema montado, com detector com cintilador líquido foi feita a padronização de uma solução de ^{241}Am , que é um emissor alfa-gama. A solução calibrada foi à mesma solução medida na comparação laboratorial organizada pelo BIPM.

4.9 Padronização do ^{131}I , ^{124}Sb e ^{177}Lu

Na etapa final do trabalho foram feitas as padronizações do ^{131}I , ^{124}Sb e ^{177}Lu . Com as amostras de ^{177}Lu mediu-se amostras com diferentes atividades para verificar se havia alguma tendência nos resultados medidos, com o aumento da atividade.

4.10 Determinação de Impurezas

Em todas as soluções radioativas calibradas, neste trabalho foram feitas medições com detector de germânio para caracterizar o radionuclídeo quanto a presença de impurezas radioquímicas.

4.11 Determinação das Incertezas

Tanto na aplicação do método de coincidência quanto de anti-coincidência foram tomados como referência o Guia para Expressão da Incerteza (1998).

Capítulo 5

PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS, EQUIPAMENTOS E MATERIAIS

5.1 Radionuclídeos Utilizados

No presente trabalho foram utilizados o ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{67}Ga , ^{124}Sb , ^{131}I , ^{177}Lu e ^{241}Am , objetivando a padronização dos radionuclídeos e testar o desempenho da medição do novo sistema implantado para os diversos tipos de decaimento. O ^{54}Mn foi utilizado como traçador na padronização do ^{55}Fe .

5.2 Produtos Químicos

Sílica, Acetona P.A., Álcool Etílico P. A. e Soluções Cintiladoras Comerciais: Hisafe, Ultima Gold e Instagel cujo fabricante é a Perkin Elmer.

5.3 Módulos Eletrônicos

5.3.1 Sistema de Coincidência

Os principais componentes utilizados no sistema de coincidência ilustrado na figura 5.1 foram os módulos eletrônicos comerciais que são:

Canal Beta

Pré-amplificadores – Camberra- 2006

Amplificadores- Camberra – 241

Somador – Ortec- 533

Analisador monocanal – Ortec- 551

Fonte de alta tensão – Ortec – 556

Retardo – Ortec – 416 A

Fixador de tempo morto - Tennelec – TC 410 A

Canal Gama

Detector NaI(Tl)- Harshaw – 3x3

Amplificador – Ortec – 460

Analizador monocanal – Ortec - 551

Unidade de Coincidência – Ortec

Fixador de tempo morto Tennelec – TC 410 A

Retardo – Ortec – 416 A

Fonte de alta tensão – Camberra – 31020

Canal de Coincidência

Unidade de coincidência universal – Ortec 418 A

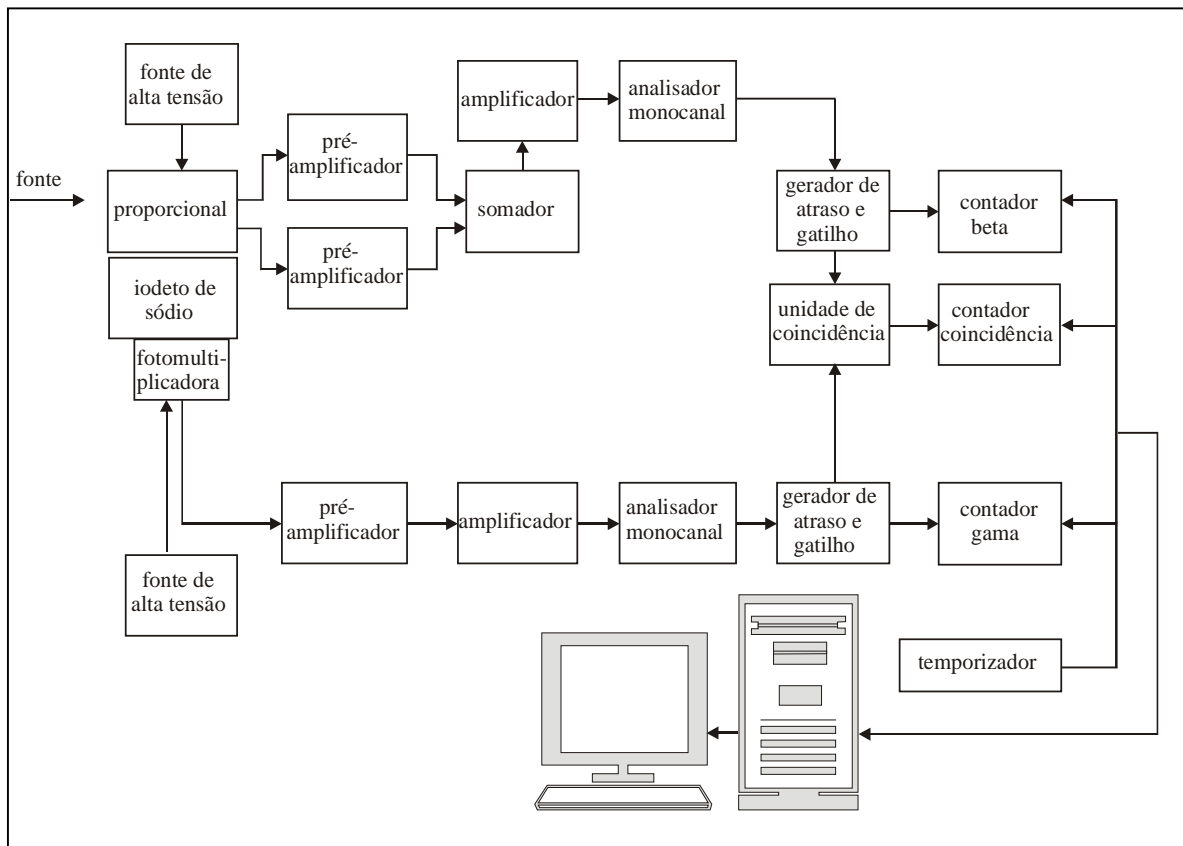


Figura 5.1 Diagrama de blocos do sistema de coincidência

5.3.2 Sistema de Anti-Coincidência

Os principais módulos eletrônicos utilizados no sistema de anti-coincidência ilustrado na figura 5.2 são:

Canal Beta

Gerador de tempo morto – LNHB – MTR2

Amplificador - Ortec – 572

Somador – Ortec – 433 A

Fonte de alta tensão – Ortec –556

Canal Gama

Detector NaI(Tl)- Harshaw – 3 x 3

Gerador de tempo morto – LNHB – MTR2

Amplificador - Ortec – 572

MI-1- LNHB – Unidade lógica que permite selecionar a contagem na janela gama e a contagem gama não coincidentes

MI-3- LNHB- atua como discriminador no canal gama

Atraso – Ortec – 427 A

Fonte de Alta Tensão- Ortec- 478

Oscilador – 1 Mhz –IRD-LNMRI- comum a todo o sistema de medição

MI 2- LNHB- atua como gerador de tempo vivo - comum ao sistema

5.4 Detectores

Detector proporcional com geometria 4π de fluxo gasoso operando a pressão normal– ETL

Detector NaI(Tl) 3x3 – Harshaw.

Detector com cintilador líquido, acoplado a duas fotomultiplicadoras- Amperex - 1000

5.5 Equipamentos de Apoio

Osciloscópio –Tecktronix - 2245 A

Frequencímetro digital- Agilent - 53131 A

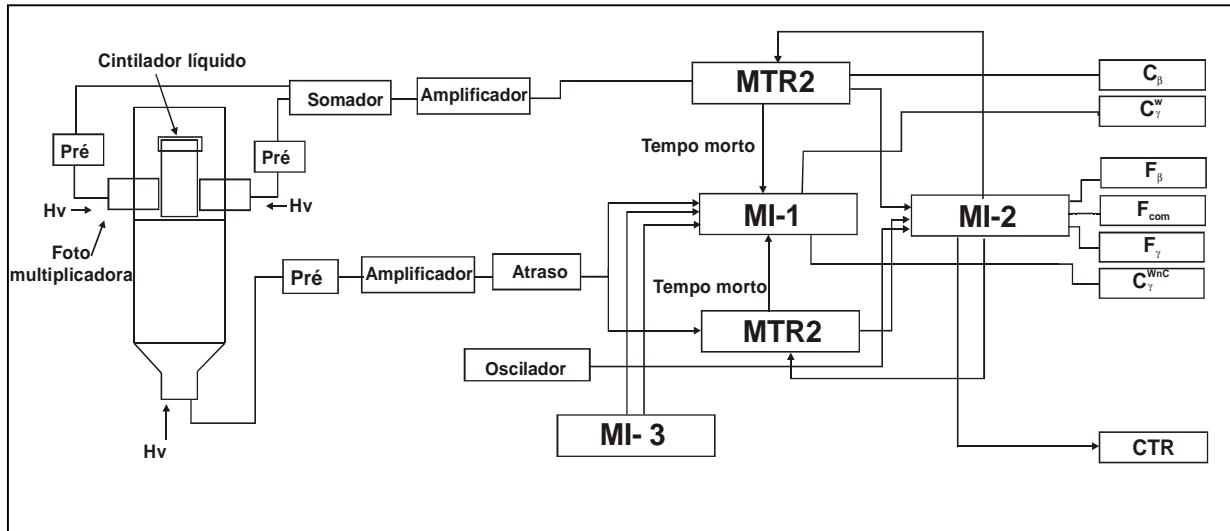


Figura 5.2 - Diagrama de blocos – sistema de anti-coincidência

5.6 Procedimento Experimental

5.6.1 Preparação das Amostras

a- Contador proporcional

As amostras que foram medidas no detector proporcional foram depositadas em filmes de VYNS (Acetato de Cloreto de Polivinila) metalizados com ouro, com densidade média de $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Para minimizar a auto-absorção nas amostras e permitir uma distribuição mais homogênea dos cristais nas amostras foi depositada uma gota, 10 mg de “Tween 20” (Polioxietileno Sorbitol) sobre as mesmas. Tal procedimento foi adotado na preparação das amostras de ^{51}Cr , ^{55}Fe + ^{54}Mn e ^{67}Ga .

b- Cintilação Líquida

As amostras preparadas para o detector com cintilador líquido foram depositadas em frascos de vidro próprio para a contagem em cintilação líquida utilizou-se um volume entre 10 e 20 ml nos quais foram adicionados as alíquotas das soluções radioativas. Foram utilizados três cintiladores comerciais fabricados pela Perkin Helmer: *Hisafe*, *Ultima Gold* e *Insta-gel*. As tabelas 6.11, 6.14, 6.17 e 6.21, mostram as massas utilizadas bem como os diferentes líquidos cintiladores utilizados na padronização do ^{124}Sb , ^{131}I , ^{177}Lu e ^{241}Am . A figura 5.3 representa o tipo de amostra utilizada para a contagem com o cintilador líquido.

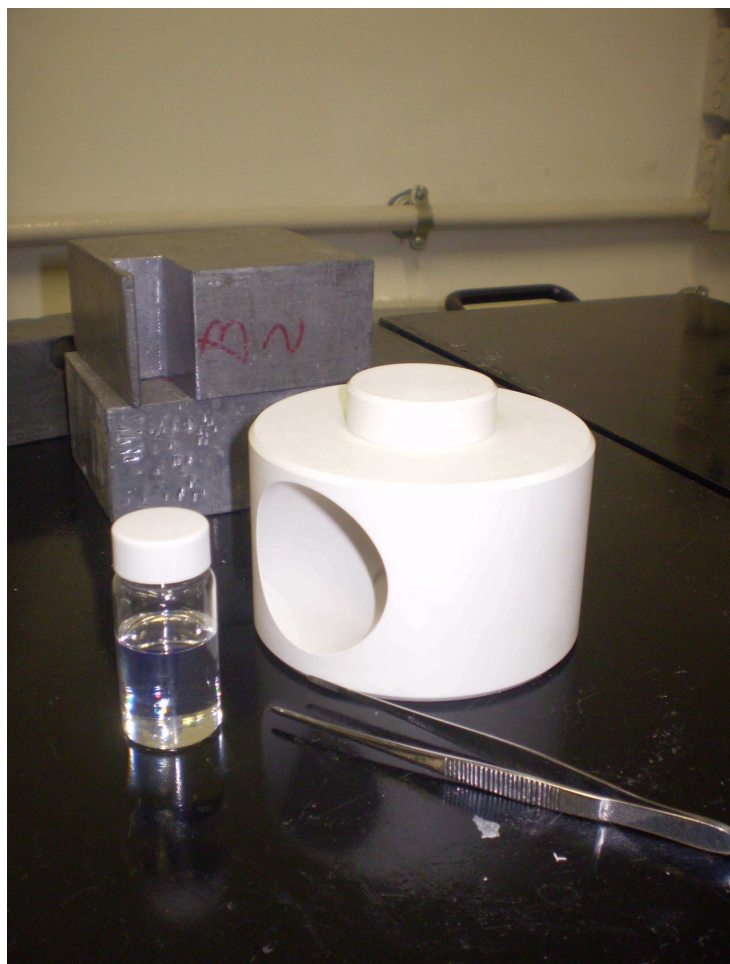


Figura 5.3– Amostra de cintilação líquida e célula de contagem

5.6.2 Ajuste na Eletrônica

5.6.2.1 Medição da Frequência de Referência

O MTR2, utiliza como referência de tempo um pulsador a quartzo de 1 MHz para geração do tempo vivo. Esta frequência foi medida com um freqüencímetro calibrado sendo o resultado obtido de $1000011 \pm 0,5$ Hz.

5.6.2.2 Atraso no canal Gama

Para garantir que os pulsos provenientes da desintegração beta fossem registrados antes dos eventos gama um atraso de $4\mu\text{s}$ foi introduzido no canal gama.

5.6.2.3 Tempo Morto Utilizado

O MTR2 permite gerar tempos mortos entre 20 a $120\mu\text{s}$. Para o ^{67}Ga foi utilizado $110\mu\text{s}$, para o ^{51}Cr e ^{55}Fe com $20\mu\text{s}$. Para o ^{241}Am , ^{124}Sb , ^{131}I e ^{177}Lu foi utilizado $50\mu\text{s}$ para reduzir o efeito de pulsos em atraso. A medição do tempo morto foi feita com osciloscópio, por meio da medição da largura do pulso gerado pelo MTR2.

Para o sistema de coincidência foi determinado o tempo morto de $4,371 \pm 0,059\mu\text{s}$ para o canal beta e $3,800 \pm 0,046\mu\text{s}$ para o canal gama. O valor de tempo de resolução do circuito de coincidência foi de $1,218 \pm 0,017\mu\text{s}$.

5.6.2.4 Fixação da Janela de Contagem no Canal Gama

A fixação das janelas depende do esquema de desintegração de cada radionuclídeo. Como no método de coincidência a janela gama corresponde ao ramo gama de maior intensidade que não sofre interferência de energias próximas e que esteja associado a um ou vários ramos beta com desintegração pronta. Por exemplo, para o ^{54}Mn que foi utilizado como traçador na medida do ^{55}Fe a energia de trabalho foi de 836 keV .

5.6.2.5 Tensão de Operação do Detector de NaI(Tl)

A tensão de operação deste tipo de detector normalmente é indicada pelo fabricante uma vez que o seu patamar de tensão é pequeno. Trabalhou-se com $+1200$ Volts.

5.6.2.6 Estabelecimento da Tensão de Operação do Detector Proporcional

A tensão de operação é determinada por meio do patamar de tensão no qual, escolhe-se a região central do patamar de tensão. Entretanto, às vezes esta tensão pode

ser incrementada, até a saturação do pulso, o que pode garantir valores de eficiência beta maiores. A tabela 5.1 mostra os valores de tensão operacional do detector proporcional, e ganhos do amplificador do canal beta utilizados na padronização primária de alguns radionuclídeos utilizados neste trabalho.

Tabela 5.1 Tensão de operação do detector proporcional

Radionuclideo	Ganho (Amplificador)	Tensão (V)
^{51}Cr	20	1740
$^{55}\text{Fe} + ^{54}\text{Mn}$	50	1820
^{67}Ga	20	1750

5.6.2.7 Ajuste de Ganho de cada Hemisfério do Detector Proporcional

O Detector 4π é simétrico e composto por dois detectores 2π . Por vezes cada detector 2π apresentam ganhos diferentes devido a aspectos construtivos do detector. Por conseguinte, estes pulsos devem ser ajustados de forma a terem a mesma altura de pulso antes de entrar no somador. Este ajuste da altura de pulsos é feito por meio dos amplificadores. As alturas de pulsos são comparadas em multicanal ou osciloscópio em seguida igualam-se as alturas de pulsos por meio do ganho fino do amplificador. Procedimento semelhante é adotado no detector com cintilador líquido.

5.6.2.8 Tensão de Operação do Detector com Cintilador Líquido

O procedimento é semelhante ao detector proporcional visando à obtenção do maior valor de eficiência de contagem e por conseguinte uma redução da faixa de extrapolação para que a eficiência alcance 100%. A tabela 5.2 ilustra os valores de tensão e ganho utilizados na padronização primária de alguns radionuclídeos utilizados neste trabalho.

Tabela 5.2 Tensão de operação do detector com cintilador líquido

Radionuclideo	Ganho	Tensão (V)
^{124}Sb	500	1460
^{131}I	500	1380
^{177}Lu	500	1470
^{241}Am	200	1300

5.6.2.9 Variação da Eficiência no Canal Beta

O método utilizado para variação da eficiência no canal beta foi o de discriminação eletrônica.

5.7 Fundamentos para Medição dos Radionuclídeos em Estudo

5.7.1 Medição do ^{51}Cr

O ^{51}Cr pode ser calibrado pelos métodos de coincidência e anti-coincidência. É um radionuclídeo extremamente importante para a espectrometria gama, pois emite um raio gama de 320,08 keV, decai por captura eletrônica e possui meia-vida de 27,703 dias. No presente trabalho a mesma solução foi calibrada por coincidência e anti-coincidência.

No processo de decaimento por captura eletrônica são registrados, via detector proporcional, a contribuição dos elétrons de conversão, raio X, e elétrons Auger.

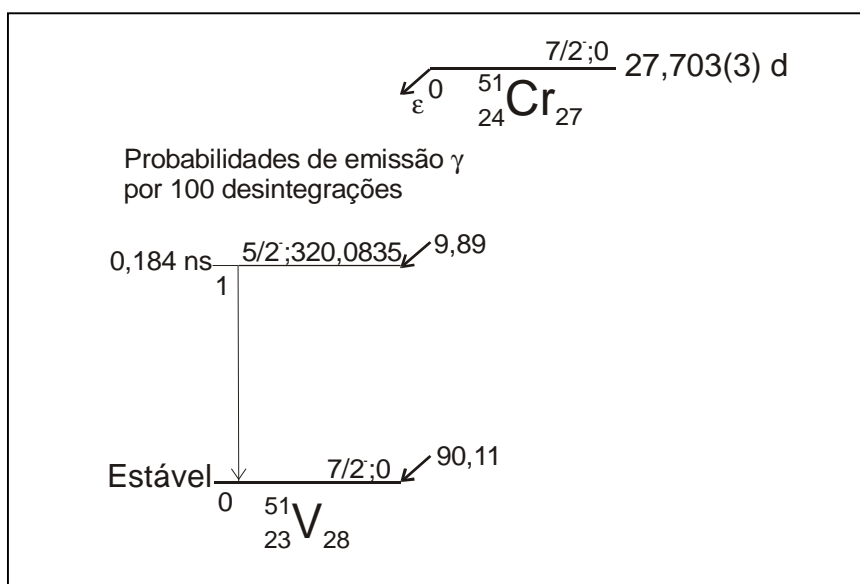


Figura 5.4 – Esquema de desintegração simplificado do ^{51}Cr

5.7.2 Medição do ^{67}Ga

O ^{67}Ga é um radionuclídeo que decai por captura eletrônica para o ^{67}Zn que é estável com meia-vida de 3,2613 dias (BÉ, 2004). Este radionuclídeo é amplamente utilizado, em diagnóstico, em medicina nuclear, por causa de sua meia-vida e as energias dos raios gamas emitidos. A principal dificuldade na calibração do ^{67}Ga é

representado pelo seu nível meta-estável que possui meia-vida de 9,1 μs . A transição gama neste nível é altamente convertida e os elétrons Auger possuem energia entre 7 e 9 keV que são emitidos em 62% de probabilidade de emissão.

No LNMRI, a padronização de uma solução de ^{67}Ga foi realizada com o objetivo de verificar a correta medição da atividade deste radionuclídeo em exames de diagnóstico realizado em clínicas e hospitais no Brasil. Devido às dificuldades encontradas em seu esquema de decaimento deve-se aplicar a técnica de extrapolação da função atividade aparente versus parâmetro de eficiência, para a determinação da atividade da amostra. Existem dois métodos que são utilizados na padronização do ^{67}Ga , o método de anti-coincidência (SANTRY *et al*,1987, BOBIN, 2007) e o método de coincidência com extrapolação para tempo morto infinito (LEWIS *et al*,1972, G-TORANO, 2004). No presente trabalho foi utilizado a contagem em anti-coincidência com tempo morto mínimo de 110 μs (DA SILVA *et al*, 2008a). A janela gama foi fixada na energia de 184,5 keV. A figura 5.5 representa o esquema de desintegração simplificado do ^{67}Ga .

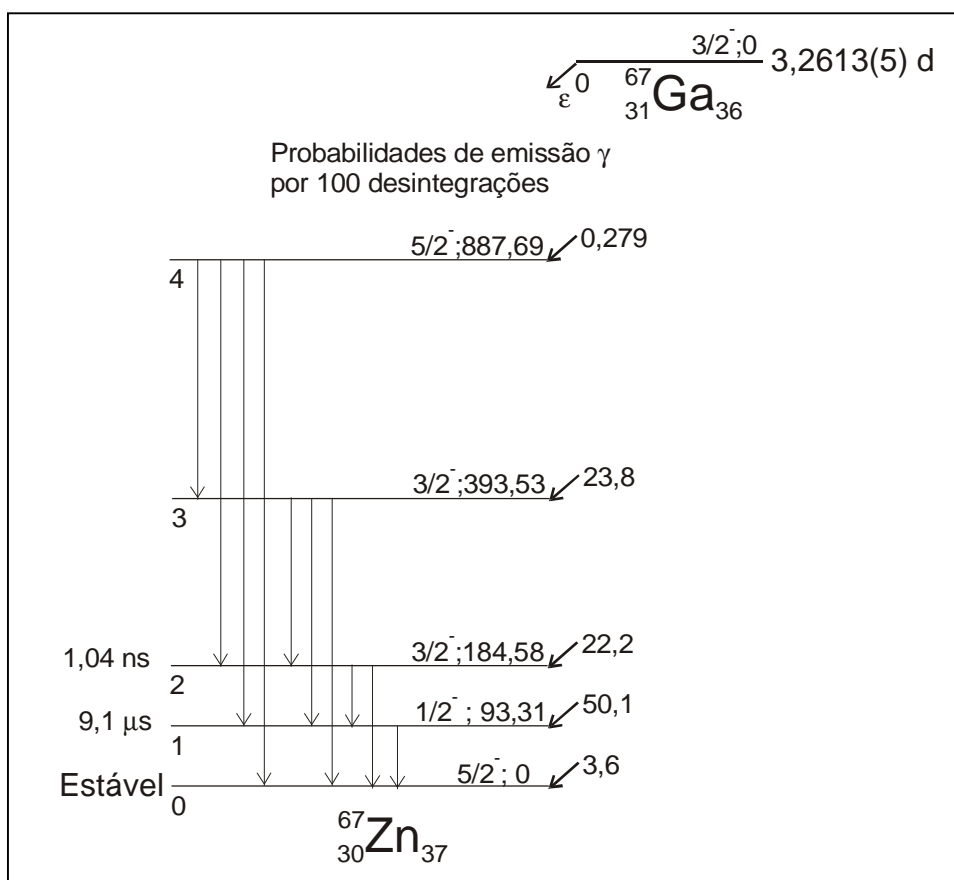


Figura 5.5 – Esquema de desintegração simplificado do ^{67}Ga

5.7.3 Medição do ^{55}Fe

O ^{55}Fe é um radionuclídeo extremamente importante na calibração de espectrômetro gama, detectores proporcionais e cintiladores. Sua meia-vida de 1101,00 dias e sua energia de raio X de 5,9 keV dão características especiais ao ^{55}Fe . Como no seu decaimento por captura eletrônica só ocorre à emissão de uma radiação gama de energia de 125,95 keV de baixíssima probabilidade de emissão ($1,3 \times 10^{-7} \%$), ele não pode ser medido utilizando diretamente o método de coincidência. Por esta razão, utiliza-se, em sua padronização, a técnica do traçador (IWAHARA, 1979). No presente estudo, foi utilizado como traçador o ^{54}Mn , por possuir energia semelhante ao do ^{55}Fe . As figuras 5.6 e 5.7 ilustram os esquemas de desintegração simplificados do ^{55}Fe e ^{54}Mn respectivamente.

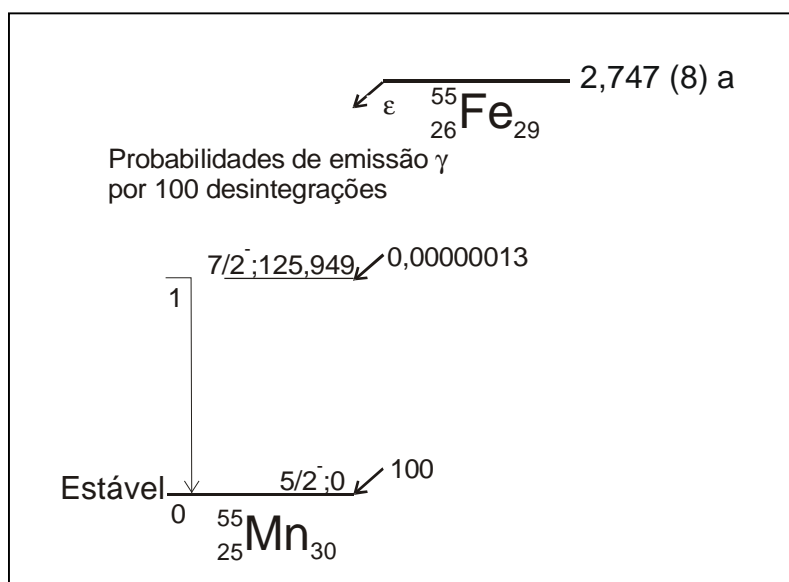


Figura 5.6 – Esquema de desintegração simplificado do ^{55}Fe .

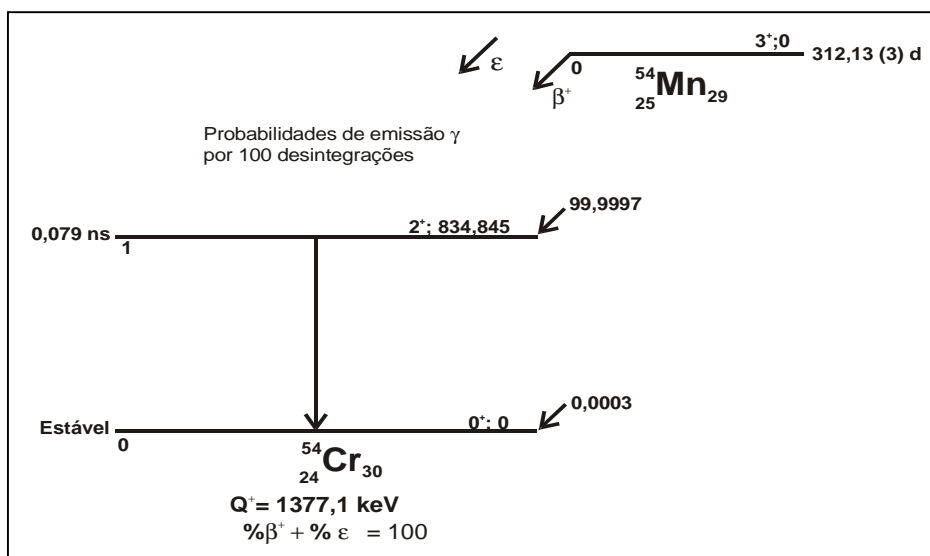


Figura 5.7 – Esquema de desintegração simplificado do ^{54}Mn .

5.7.4 Medição do ^{241}Am

O ^{241}Am é um radionuclídeo muito utilizado em espectrometria alfa e gama em decorrência de seu decaimento alfa e baixa energia gama, tem ainda aplicações em equipamento da área médica para detecção de osteoporose. Possui meia-vida de 432,6 anos e pode ser encontrado na natureza como consequência dos testes nucleares.

A padronização absoluta do ^{241}Am pode ser realizada tanto por coincidência quanto anti-coincidência, uma vez que em seu processo de decaimento ocorre a desintegração pronta de partículas alfa de energias próximas de 5,5 MeV com o gama de 59,5 keV. A figura 5.8 ilustra o esquema de desintegração simplificado do ^{241}Am .

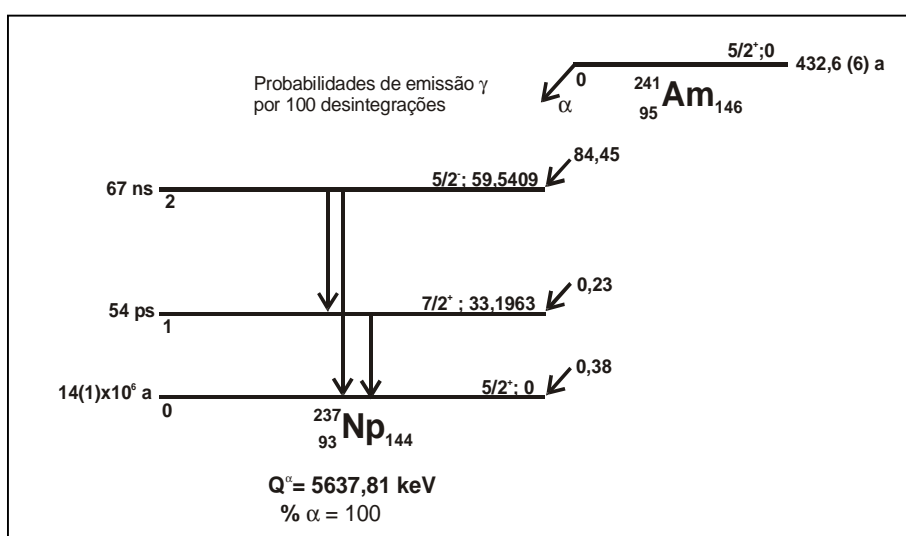


Figura 5.8 – Esquema de desintegração simplificado do ^{241}Am .

5.7.5 Medição do ^{131}I

O ^{131}I é um radionuclídeo utilizado em medicina nuclear em diagnóstico e terapia é um emissor beta-gama com espectro gama com 5 radiações principais cobrindo a faixa de energias de 80,19 keV a 722,91 keV. Possui meia-vida de 8,0233 dias o que possibilita sua aplicação como padrão em espectrometria gama. A padronização primária de soluções deste radionuclídeo pode ser feita pelos métodos de coincidência e anti-coincidência. No presente trabalho utilizou-se a contagem em anti-coincidência tendo como janela de contagem a radiação gama de 364,49 keV. A figura 5.9 representa o esquema de desintegração simplificado do ^{131}I .

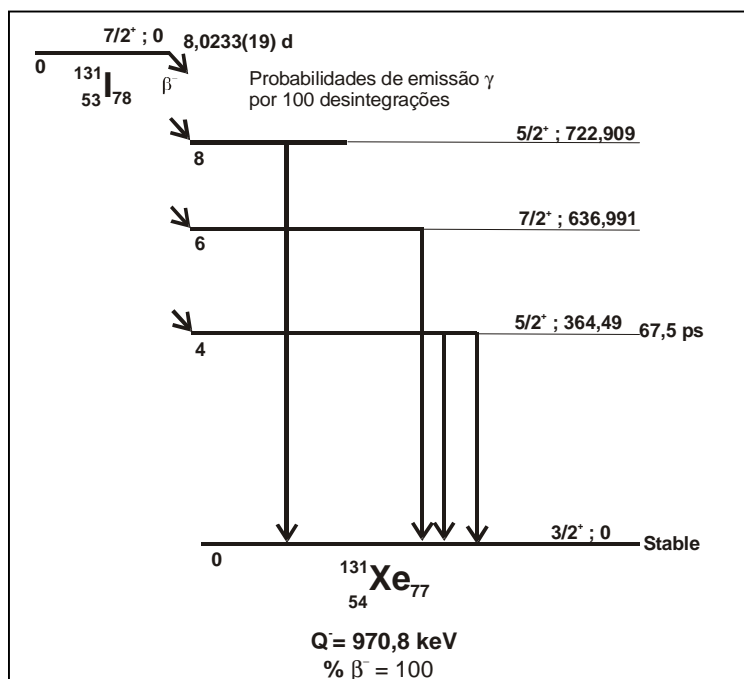


Figura 5.9 – Esquema de desintegração Simplificado do ^{131}I .

5.7.6 Medição do ^{124}Sb

O ^{124}Sb é um radionuclídeo utilizado em espectrometria gama e é um emissor beta-gama com espectro gama com 15 linhas principais cobrindo a faixa de energia de 602,73 keV a 2090,94 keV. Possui meia-vida de 60,20 dias o que possibilita sua aplicação como padrão em espectrometria gama. A padronização primária de soluções deste radionuclídeo pode ser feita pelos métodos de coincidência e anti-coincidência. No presente trabalho foram utilizados os dois métodos. Sua padronização foi realizada pelos dois métodos utilizando como janela de contagem no canal gama a energia de 602,73 keV, no canal beta o detector com cintilador líquido coleta a contribuição das

partículas beta (DA SILVA *et al*, 2008 b). A figura 5.10 representa o esquema de desintegração simplificado do ^{124}Sb .

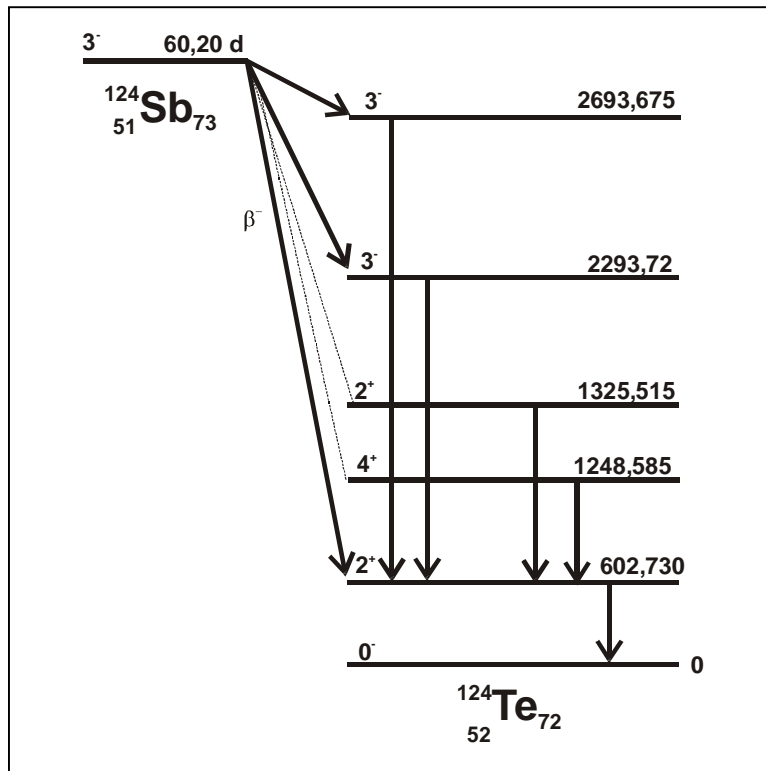


Figura 5.10 – Esquema de desintegração simplificado do ^{124}Sb .

5.7.7 Medição do ^{177}Lu

O ^{177}Lu é um emissor beta-gama com espectro gama com duas linhas principais com energias de 112,95 keV e 208,37 keV. O seu uso vem aumentando em medicina nuclear para tratamento de câncer da bexiga. Possui meia-vida de 6,647 dias. A padronização primária de soluções deste radionuclídeo pode ser feita pelos métodos de coincidência e anti-coincidência. Sua padronização foi realizada pelo método de anti-coincidência utilizando como janela de contagem no canal gama a energia de 208,37 keV. No canal beta o detector com cintilador líquido coletou a contribuição dos três ramos beta. A figura 5.11 representa o esquema de desintegração simplificado do ^{177}Lu .

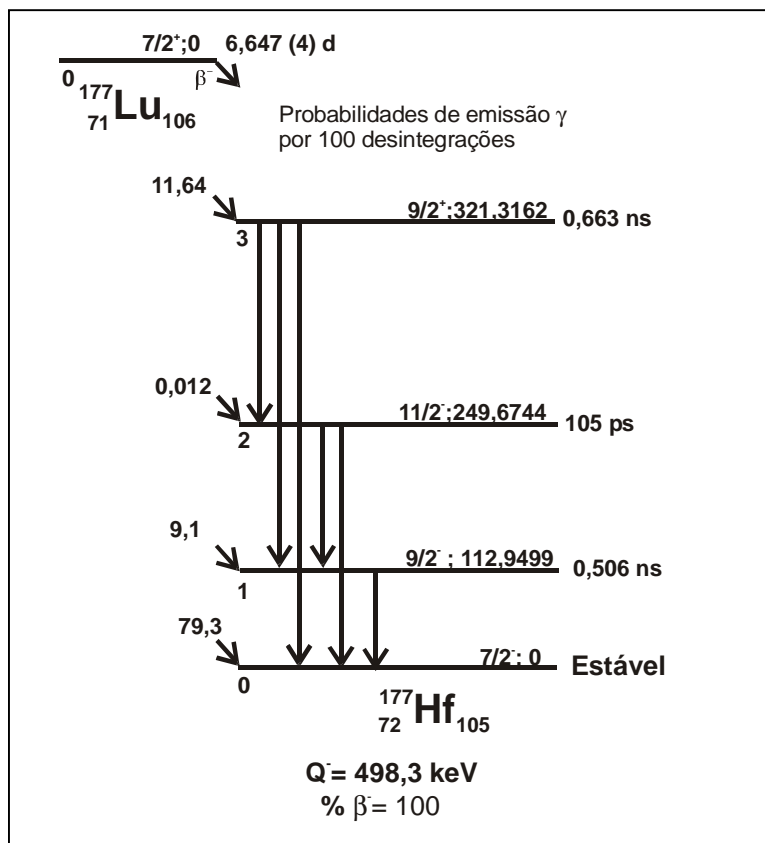


Figura 5.11– Esquema de decaimento simplificado do ^{177}Lu .

5.8 Aquisição e Processamento de Dados

5.8.1 Aquisição de Dados

Para aquisição de dados do sistema de anti-coincidência foi desenvolvido um programa em Labview que permite a aquisição das contagens de forma semi-automática, no qual é fixado o tempo de medição e o número de medidas. Ao final do tempo de contagem, o programa arquiva os dados com a identificação da fonte e demais dados em arquivo .txt.

5.8.2 Processamento de Dados

Para execução dos cálculos foi desenvolvida uma planilha de cálculo em excel para determinação da atividade aparente e parâmetro de eficiência. Com estes dois parâmetros foram feitos ajustes por mínimos quadrados utilizando o programa SigmaPlot, Origin e Excel para determinação da concentração da atividade para cada radionuclídeo.

Capítulo 6

RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1 Padronização do ^{51}Cr

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{51}Cr foi feita por meio da medição da atividade de quatro amostras. A tabela 6.1 mostra os resultados obtidos durante os experimentos.

Tabela 6.1 Valores de concentração de atividade do ^{51}Cr obtidos pelo método de a MI-1- LNHB – Unidade lógica que permite selecionar a contagem na janela gama e a contagem gama não coincidentes anti-coincidência.

Amostra	Concentração de Atividade kBqg^{-1}
02	3663,059
03	3670,517
05	3657,068
06	3672,912
Média	*3666,83 \pm 4,27 (0,12%)

* Data de referência:01/12/2005 0 hora universal

As tabelas 6.2 e 6.3 representam as componentes de incertezas obtidas na padronização do ^{51}Cr utilizando os métodos de anti-coincidência e coincidência.

Tabela 6.2 Principais componentes de incertezas na padronização do ^{51}Cr pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Ajuste	0,03	
Estatística	0,12	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		0,01
Massa		0,05
Meia vida		0,08
Incerteza em F		0,01
Incerteza combinada		0,16

Tabela 6.3 Principais componentes de incertezas na padronização do ^{51}Cr pelo método de coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Ajuste	0,05	
Estatística	0,23	
Tempo Morto		<0,01
Tempo de resolução		0,07
Efeito Gandy		0,16
Radiação de Fundo		0,21
Massa		0,05
Meia-vida		0,08
Incerteza em F*		0,01
Incerteza combinada		0,37 %

Da comparação dos resultados obtidos com o método de coincidência representados na tabela 6.4, podemos afirmar que os valores obtidos estão bons, considerando que o processo de padronização deste radionuclídeo seja de grau intermediário de dificuldade.

Tabela 6.4 Comparação da concentração de atividade do ^{51}Cr obtidos pelos métodos de coincidência e anti-coincidência.

Método de Medição	Concentração de Atividade (MBq/g)	Incerteza (%)
Método de Coincidência	3,695	0,37
Método de Anti-coincidência	3,667	0,16
Erro Relativo(%)	0,76 %	

As figuras 6.1 e 6.2 representam curvas típicas de extrapolação obtidas com os métodos de anti-coincidência e coincidência respectivamente.

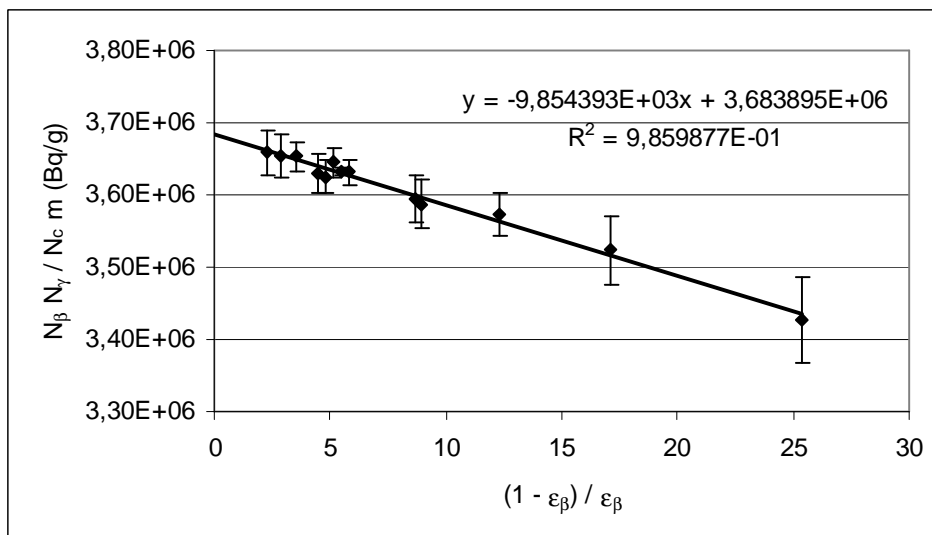


Figura 6.1- Curva de extrapolação típica do método de anti-coincidência para o ^{51}Cr

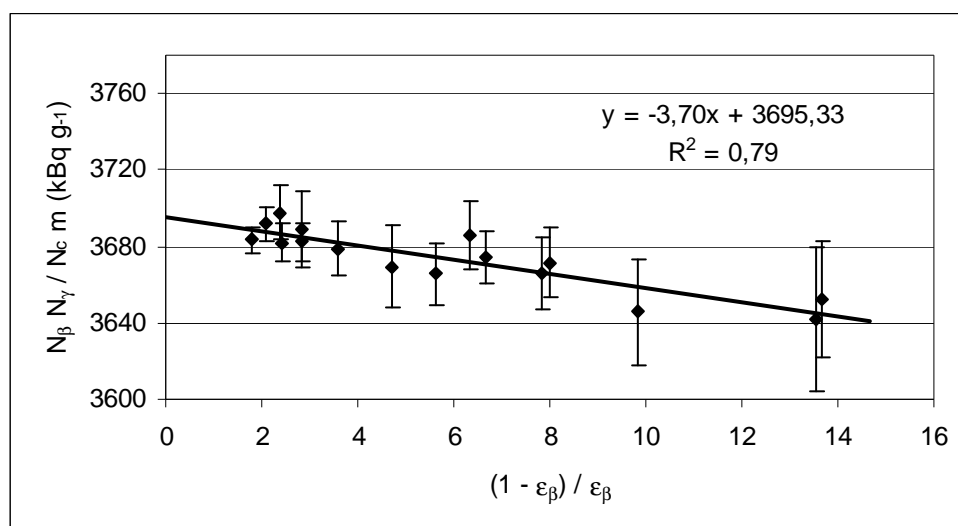


Figura 6.2- Curva de extrapolação típica do método de coincidência para o ^{51}Cr

6.2 Padronização do ^{67}Ga

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{67}Ga foi feita por meio da média obtida na concentração de atividade de três amostras, duas delas foram calibradas duas vezes para melhorar a estatística de medição. Como as fontes finas são depositadas em filmes muito frágeis duas das amostras previamente preparadas foram perdidas.

A tabela 6.5 mostra os resultados obtidos durante os experimentos de padronização deste radionuclídeo e a tabela 6.6 representa as principais incertezas na padronização do ^{67}Ga . A figura 6.3 representa uma curva de extrapolação típica obtida com o método de anti-coincidência para o ^{67}Ga .

Tabela 6.5 Valores de concentração de atividade do ^{67}Ga obtidos com o método de anti-coincidência.

Amostra	Concentração de Atividade MBqg^{-1}
01	13,690
02	13,733
02	13,621
04	13,523
04	13,861
Média	*13,686 ± 0,046 (0,34%)

* Data de referência: 05/12/2005 0 hora local

Tabela 6.6 Principais componentes de Incertezas na padronização do ^{67}Ga pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Ajuste	0,09	
Estatística	0,34	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		<0,01
Massa		0,05
Meia-vida		0,06
Incerteza combinada		0,36 %

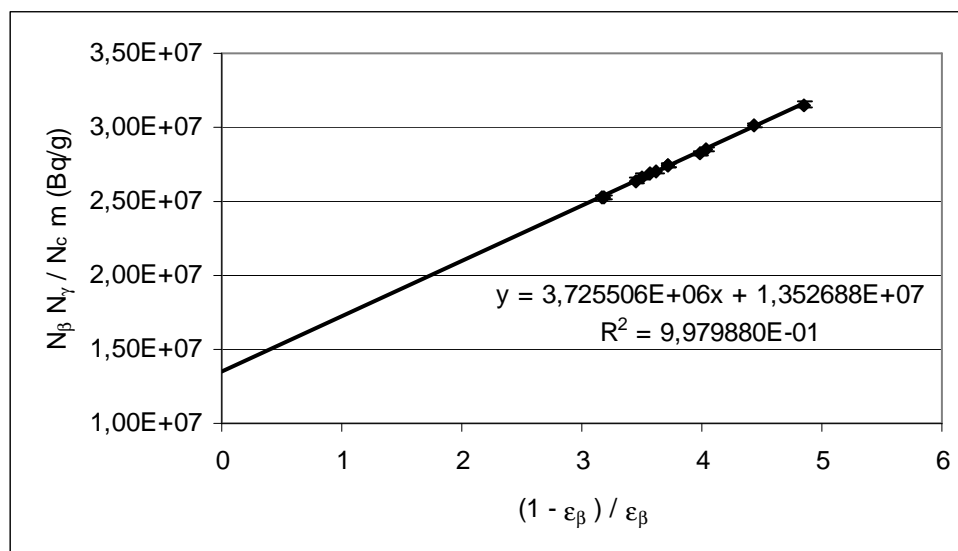


Figura 6.3- Curva de extrapolação típica método de anti-coincidência para o ^{67}Ga

Como teste de desempenho os resultados obtidos com o sistema de anti-coincidência foi comparado com a medição realizada com o sistema de referência com câmara de

ionização tipo poço. Esses resultados estão representados na tabela 6.7. A câmara de ionização foi calibrada em 2001 com solução padrão fornecida pelo laboratório americano, National Institute of Science and Technology- NIST.

Tabela 6.7 Comparação da concentração de atividade do ^{67}Ga com o valor de referência.

Método de Medição	Concentração de Atividade (MBq/g)	Incerteza (%)
Câmara de Ionização	13,721	0,68
Método de Anti-coincidência	13,686	0,36
Erro Relativo(%)	0,26	

Da comparação dos resultados podemos afirmar que os mesmos estão ótimos, considerando que este radionuclídeo apresenta um grau elevado de dificuldades no processo de padronização.

6.3 Padronização do ^{55}Fe

Na padronização do ^{55}Fe foram medidas 5 amostras das quais duas foram repetidas as medições para melhorar a estatística de medição. Na tabela 6.8 e 6.9 estão representados os resultados obtidos durante os experimentos, para a concentração de atividade e incerteza de medição respectivamente. Deve-se observar que os valores obtidos foram utilizados como valores de referência do LNMRI para a comparação chave organizada pelo BIPM em 2006.

Tabela 6.8 Valores de concentração de atividade do ^{55}Fe obtidos com o método de anti-coincidência

Amostra	Concentração de Atividade kBqg⁻¹
2	542
2	519
7	524
8	544
8	543
9	537
10	540
Média	* 536 ± 4 (0,75%)

* Data de Referência: 01/12/2005 0 hora universal

Tabela 6.9 Principais componentes de Incertezas na padronização do ^{55}Fe pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Ajuste	0,45	
Estatística	0,75	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		0,02
Massa		0,05
Meia vida		< 0,01
Atividade do Traçador		0,46
Incerteza combinada		0,99

Uma curva de extrapolação típica para o ^{55}Fe está representada na figura 6.4.

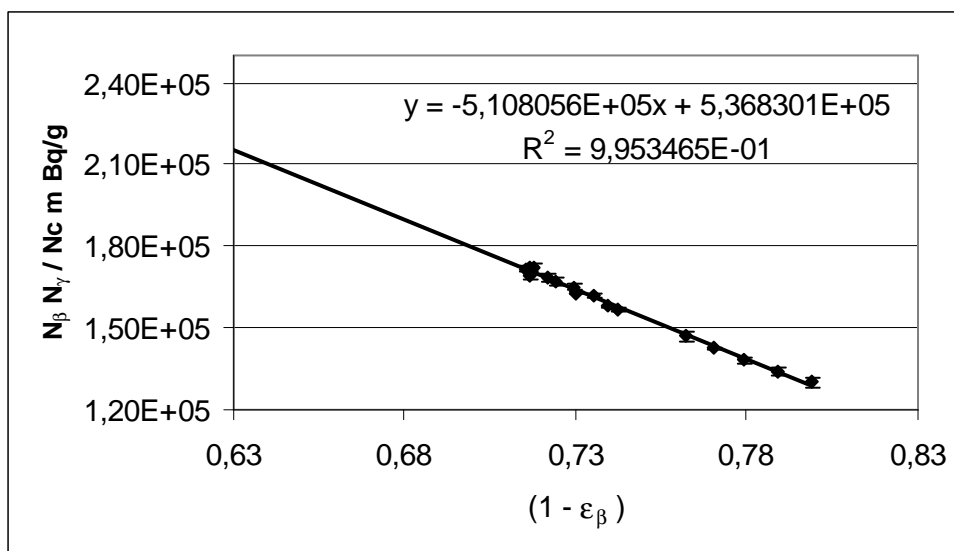


Figura 6.4- Curva de extrapolação típica para o ^{55}Fe

Na análise de resultados da intercomparação do ^{55}Fe (RATEL, 2008), figura 6.5 observa-se que dois laboratórios estão estatisticamente fora da banda de incerteza de um desvio padrão linha tracejada, a linha pontilhada representa o desvio padrão da média. Como proposta de uma nova comparação estes dois laboratórios deveriam participar para tentar identificar e corrigir erros sistemáticos em suas metodologias.

- ▲ Método coincidência $4\pi(\text{PC})\beta,\alpha,\gamma$ - traçador ■ Método anti-coincidência $4\pi(\text{PC})\beta,\alpha,\gamma$ - traçador
 ◇ Método coincidência $4\pi(\text{PPC})\beta,\alpha,\gamma$ - traçador ● Método do Contador $4\pi(\text{PPC})e_x-x$ ★ Método do Contador $4\pi(\text{MPPC})e_x-x$
 ○ Método CIEMAT/NIST ^1H como traçador □ Método CIEMAT/NIST ^{54}Mn como traçador ☆ Método do TDCT
 ▽ Método $4\pi(\text{CL})^{54}\text{Mn}$ com o traçador △ Método TDCR $4\pi(\text{CL}) - ^{54}\text{Mn}$ como traçador
 × Microcalorímetro ⊗ Método ângulo sólido definido ⊗ Método ângulo sólido definido com detector de Si(Li)

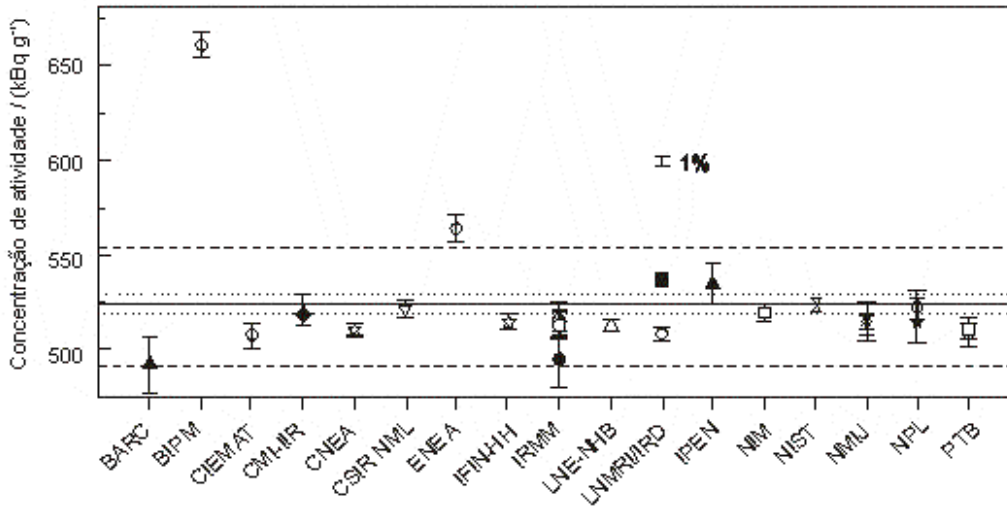


Figura 6.5 – Resultado da Intercomparação do ^{55}Fe organizada pelo BIPM

Tabela 6.10 Comparação da concentração de atividade do ^{55}Fe com o valor de referência

	Concentração de Atividade MBqg ⁻¹ *	Incerteza (%)
Valor de Referência	522	0,17
Método de Anti-coincidência	536	0,99
Erro Relativo(%)	2,7	

Embora o erro relativo em relação ao valor de referência esteja relativamente alto, tabela 6.10, este valor foi considerado para o estabelecimento do valor de referência da comparação chave do ^{55}Fe (RATEL, 2008).

6.4 Padronização do ^{241}Am

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{241}Am foi feita por meio da determinação da concentração de atividade de cinco amostras. A tabela 6.11 apresenta os resultados obtidos durante os experimentos de padronização deste radionuclídeo. As tabelas 6.12 e 6.13 representam respectivamente os valores de erro

relativo em relação ao valor de referência e as incertezas determinadas durante a padronização do ^{241}Am .

Tabela 6.11 Valores de concentração de atividade do ^{241}Am obtidos com o método de anti-coincidência.

Amostra	Massa(g)	Meio e Volume	Concentração de Atividade kBqg^{-1} *
64	0,019648	Hisafe 10 ml	292,855
65	0,010698	Hisafe 15 ml	292,101
66	0,020473	Hisafe 20 ml	292,322
67	0,009419	Hisafe 20 ml	294,236
68	0,010300	Hisafe 20 ml	293,277
Média			292,958 ± 0,347 (0,12%)

* Data de referência: 01/05/2006 0 hora local

Tabela 6.12 Comparação da concentração de atividade do ^{241}Am com o valor de referência.

	Concentração de Atividade kBqg^{-1}
Valor de Referência*	292,744
Método de Anti-coincidência	292,958
Erro Relativo(%)	0,07

* Média obtida na Intercomparação BIPM

Da comparação dos resultados obtidos com o valor de referência podemos afirmar que os valores obtidos estão ótimos, mesmo considerando que o processo de padronização do ^{241}Am seja relativamente simples.

Tabela 6.13 Principais componentes de incertezas na determinação da concentração de atividade do ^{241}Am pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,12	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		0,01
Massa		0,05
Meia vida		<0,01
Incerteza combinada		0,13

6.5 Padronização do ^{131}I

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{131}I , foi feita por meio da medição da concentração de atividade de quatro amostras. A tabela 6.14 mostra os resultados obtidos durante os experimentos de padronização deste radionuclídeo. As tabelas 6.15 e 6.16 representam respectivamente as incertezas e os valores de erro relativo em relação ao valor de referência e determinadas durante a padronização do ^{131}I .

Tabela 6.14 Valores de concentração de atividade do ^{131}I obtidos com o método de anti-coincidência.

Amostra	Massa(g)	Meio e Volume	Concentração de Atividade M Bqg^{-1} *
09C01	0,02585	Hisafe 20 ml	39,915
10C01	0,02760	Hisafe 20 ml	39,824
11C01	0,02727	Hisafe 20 ml	39,876
12C01	0,02815	Hisafe 20 ml	39,991
Média			$39,902 \pm 0,035$ (0,09%)

*Data de referência: 05/07/2006 0 hora local

Da comparação dos resultados obtidos com o valor de referência podemos afirmar que o valor do erro relativo está um pouco alto, porém ainda compatível com suas aplicações. No futuro a padronização poderia ser repetida para verificar algum parâmetro que afastou os valores obtidos da referência.

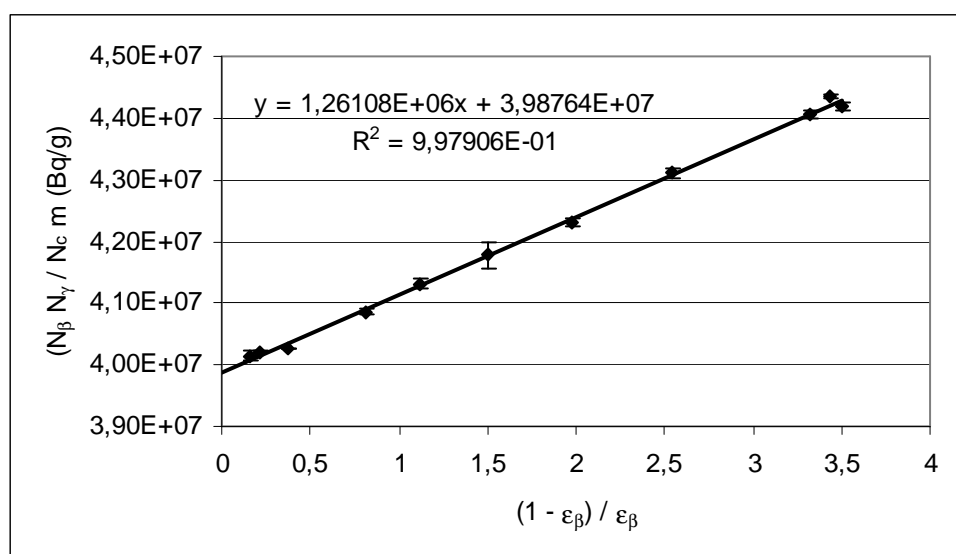


Figura 6.6 Curva de extrapolação típica método de anti-coincidência para o ^{131}I .

Tabela 6.15 Principais componentes de incertezas na determinação da concentração de atividade do ^{131}I pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,09	
Ajuste	0,12	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		0,04
Massa		0,05
Meia vida		0,06
Incerteza combinada		0,17

Tabela 6.16 Comparação da concentração de atividade do ^{131}I com o valor de referência

	Concentração de Atividade MBqg⁻¹*	Incerteza (%)
Câmara de Ionização	39,54	0,64
Método de Anti-coincidência	39,90	0,17
Erro Relativo(%)	0,91	

6.6 Padronização do ^{124}Sb

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{124}Sb , foi feita por meio da medição da concentração de atividade de oito amostras. A tabela 6.17 mostra os resultados obtidos durante os experimentos de padronização deste radionuclídeo. As tabelas 6.18 e 6.19 ilustram as componentes de incerteza obtidas na padronização do ^{124}Sb pelos métodos de anti-coincidência e coincidência, respectivamente. Uma curva de extrapolação típica obtida durante a padronização do ^{124}Sb , está representado na figura 6.7 e 6.8 obtida com os métodos de anti-coincidência e coincidência respectivamente. A tabelas 6.20 apresenta o erro relativo obtido para os métodos de coincidência e anti-coincidência em relação ao valor de referência.

Tabela 6.17 Valores de concentração de atividade de do ^{124}Sb obtidos com o método de anti-coincidência

Amostra	Massa(g)	Meio e Volume	Concentração de Atividade M Bqg^{-1} *
01C01	0,023720	Hisafe 20 ml	1,722
02C01	0,023302	Instagel 20 ml	1,705
03C01	0,022258	Ultimagold 20 ml	1,711
04C01	0,032355	Hisafe 20 ml	1,710
05C01	0,034123	``	1,708
06C01	0,034863	``	1,706
07C01	0,031379	``	1,709
08C01	0,033683	``	1,710
Média			$1,710 \pm 0,001$ (0,11%)

*Data de referência: 05/07/2006 0 hora universal

Da comparação dos resultados obtidos com o valor de referência podemos afirmar que os valores obtidos estão ótimos, mesmo considerando que o processo de padronização do ^{124}Sb seja relativamente simples, porém ainda pouco estudado. Entretanto, no relatório preliminar do exercício de comparação, dos oito laboratórios que participaram do exercício de comparação três laboratórios apresentam resultados que, estão fora da banda de incerteza de um desvio padrão. Como o organizador da comparação ainda não emitiu o relatório final da comparação não transcreveremos aqui o diagrama de dispersão de resultados.

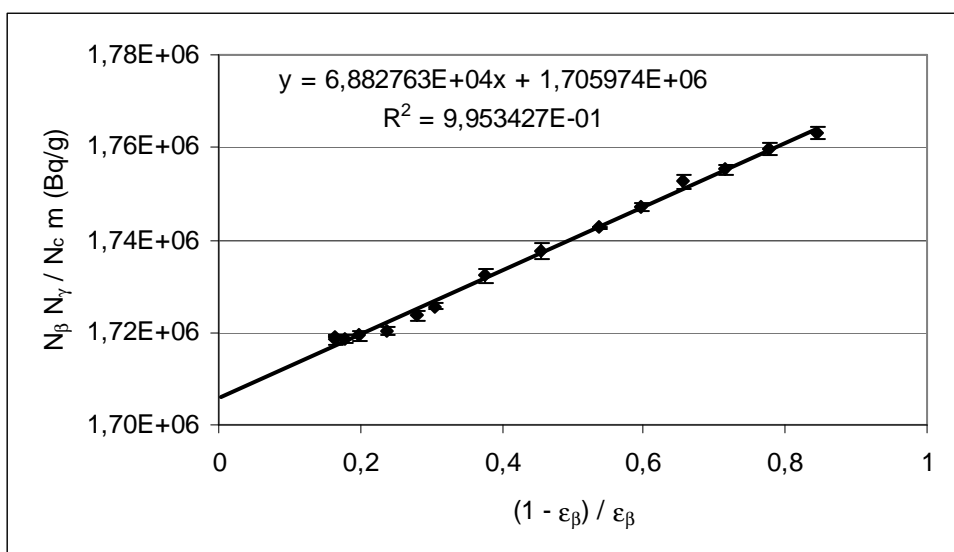


Figura 6.7- Curva de extrapolação típica método de anti-coincidência para o ^{124}Sb .

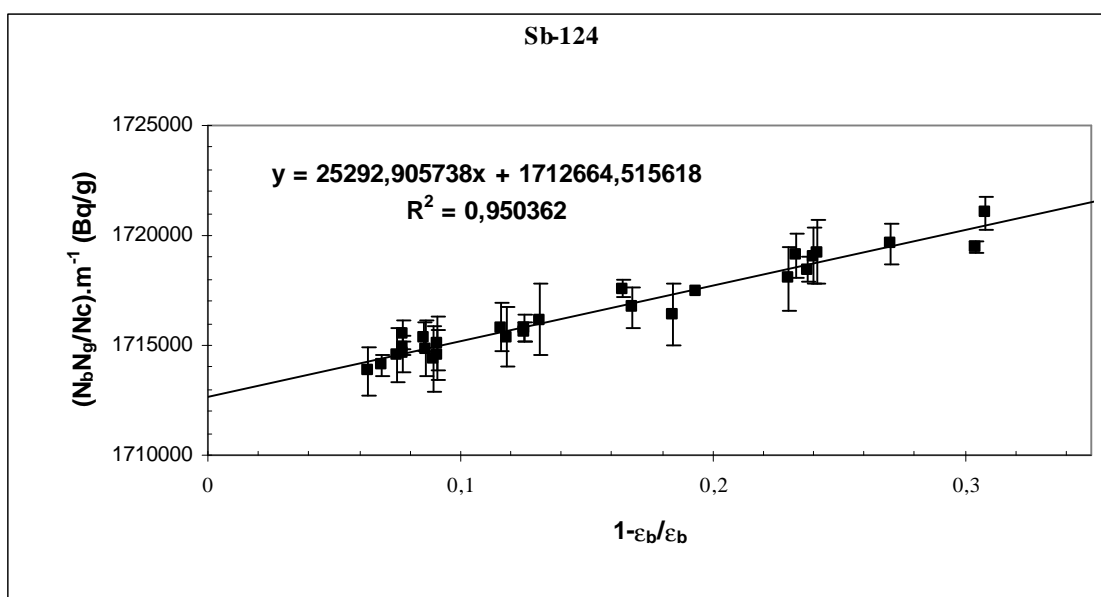


Figura 6.8- Curva de extrapolação típica método de coincidência para o ^{124}Sb .

Tabela 6.18 Principais componentes de incertezas na determinação da concentração de atividade do ^{124}Sb pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,11	
Ajuste	0,18	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		0,06
Massa		0,05
Meia vida		0,02
Incerteza combinada		0,22

Tabela 6.19 Principais componentes de incertezas na padronização do ^{124}Sb pelo método de coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Ajuste	0,02	
Estatística	0,24	
Tempo Morto		0,01
Tempo de resolução		0,05
Efeito Gandy		0,24
Radiação de Fundo		0,05
Massa		0,05
Meia-vida		0,16
Incerteza combinada		0,38 %

Tabela 6.20 Comparação da concentração de atividade do ^{124}Sb obtidos pelos métodos de coincidência e anti-coincidência

	Concentração de Atividade MBqg⁻¹	Incerteza (%)	Erro Relativo (%)
Método de Anti-coincidência	1,710	0,22	0,18
Método de coincidência	1,717	0,38	0,59
Valor de referência	1,707		

* Média obtida na comparação do EURAMET

6.7 Padronização do ^{177}Lu

A determinação da concentração da atividade da solução de ^{177}Lu , foi feita por meio da medição da concentração de atividade de seis amostras. As tabelas 6.21 e 6.22 mostram os resultados obtidos durante os experimentos de padronização deste radionuclídeo e as componentes de incerteza na padronização do ^{177}Lu . A tabela 6.23 ilustra a comparação do valor obtido com o valor medido com a câmara Capintec, respectivamente. Além da determinação da concentração da atividade do radionuclídeo, investigamos a dependência do tempo morto mínimo fixado e valores de atividade diferentes. A tabela 6.24 ilustra estes resultados que não indicaram tendência com a variação do tempo morto mínimo, ou com o aumento da atividade das amostras.

Tabela 6.21 Valores de concentração de atividade do ^{177}Lu obtidos com o método de anti-coincidência.

Amostra	Massa(g)	Meio e Volume	Concentração de Atividade M Bqg⁻¹ *
01C01	0,013224	Hisafe 15 ml	126,304
02C01	0,022073	``	125,569
03C01	0,010941	``	124,039
04C01	0,012974	Ultimagold 15 ml	125,979
05C01	0,024826	``	124,948
06C01	0,006637	``	124,054
Média			125,149 ± 0,395 (0,32%)

* Data de referência: 25/02/2008 0 hora local

Da comparação dos resultados obtidos com o valor de referência podemos afirmar que os valores obtidos estão adequados, considerando que o processo de padronização

deste radionuclídeo seja de grau intermediário de dificuldade, e ainda por ser um radionuclídeo pouco estudado. Uma curva de extrapolação típica é ilustrado na figura 6.9 obtida com o método de anti-coincidência.

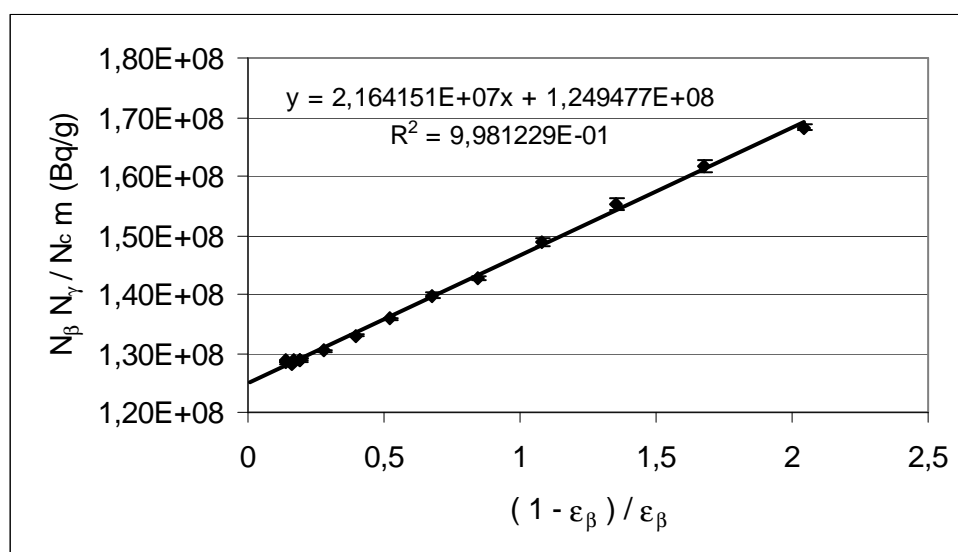


Figura 6.9- Curva de extrapolação típica método de anti-coincidência para o ^{177}Lu .

Tabela 6.22 Principais componentes de incertezas na determinação da concentração de atividade do ^{177}Lu pelo método de anti-coincidência.

Componente	Tipo A (%)	Tipo B (%)
Estatística	0,32	
Ajuste	0,11	
Tempo vivo		0,01
Radiação de Fundo		<0,01
Massa		0,05
Meia-vida		0,02
Incerteza combinada		0,37

Tabela 6.23 Comparação da concentração de Atividade do ^{177}Lu obtidos pelos métodos de coincidência e ativímetro Capintec.

	Concentração de Atividade MBqg ⁻¹ *	Incerteza (%)
Método de Anti-coincidência	125,149	0,37
Ativímetro CAPINTEC 17CR	126,780	2,00
Erro Relativo (%)	1,29	

Tabela 6.24 Verificação da influência da faixa de atividades medida e tempo mortos mínimo na determinação da concentração de atividade do ¹⁷⁷Lu.

Amostra	Atividade** (kBq)	Tempo Morto (μs)	ε (%)	Concentração de Atividade MBqg⁻¹ *
01C01	30	50	+ 0,96	126,304
02C01	49	50	+ 0,47	125,569
03C01	23	50	- 0,85	124,039
04C01	36	50	+ 0,88	125,979
05C01	114	25	- 0,64	124,307
05C01	118	50	- 0,34	124,680
06C01	42	25	- 0,81	124,092
06C01	43	50	- 0,84	124,054

* Data de referência: 01/03/2008 a 0 hora

** Atividade na data da medição

Capítulo 7

CONCLUSÕES

O desenvolvimento deste trabalho levou as seguintes conclusões:

A metodologia implantada com este trabalho permitiu a padronização primária de cinco radionuclídeos que ainda não tinham sido padronizados no LNMRI. Entre estes radionuclídeos citamos o ^{67}Ga que apresenta um grau elevado de dificuldade quando se usa o sistema de coincidência convencional devido a existência de um nível meta-estável com meia-vida de 9,1 μs no seu esquema de decaimento. Essa padronização permitirá também seu uso para a confirmação da rastreabilidade metrológica e para melhorar a correta administração do ^{67}Ga nas clínicas e hospitais no país.

Como ferramenta de pesquisa a metodologia implantada permite obter incertezas de medição compatíveis com os métodos primários clássicos utilizados em metrologia de radionuclídeos, possibilitando a realização de trabalhos acadêmicos futuros em metrologia na área de radioatividade.

Este trabalho mostrou que para os radionuclídeos que decaem por captura eletrônica a discriminação eletrônica é uma ferramenta bastante efetiva para a variação da eficiência no canal beta, o que foi demonstrado pelas retas de extrapolação obtidas durante a realização na primeira etapa do trabalho com detector proporcional operando a pressão normal. A desvantagem em relação ao detector proporcional pressurizado ou cintilação líquida é a baixa eficiência beta originando uma região de extrapolação muito extensa que pode implicar no aumento da incerteza na padronização.

O sistema demonstrou também ter um bom desempenho quando o detector proporcional foi substituído por um detector com cintilador líquido que pode ser observado pela convergência entre os valores obtidos e o valor de referência estabelecido na última comparação chave organizada pelo BIPM (0,07%) para ^{241}Am .

Resultados animadores foram também conseguidos na padronização do ^{124}Sb , ^{51}Cr que permitiram a determinação de novos valores de referência para as probabilidades de emissão gama destes radionuclídeos que já foram publicados para o ^{51}Cr e poderão ser publicados posteriormente para o ^{124}Sb .

Esta metodologia permite a padronização de radionuclídeos que possuem esquema de desintegração simples ou complexos e estende sua aplicação a emissores beta puros utilizando a técnica de traçadores e, otimiza o tempo de padronização destes emissores.

Pode-se concluir ainda que o laboratório de metrologia de radionuclídeos do LNMRI possui agora um segundo método de padronização primário que utiliza dois detectores em seu sistema de medição e, não necessita diretamente de dados nucleares para sua aplicação; pode ser utilizado em comparações chaves internacionais aumentando assim, o grau de confiabilidade das medições de atividade realizadas no LNMRI. Entretanto, deve ser salientado que este sistema não substitui o sistema de coincidência existente, estes devem operar simultaneamente, pois são complementares.

O sistema precisa ainda passar por otimização de sua blindagem visando facilitar o processo de troca de amostra e aumentar também o seu espaço interno. Uma fotomultiplicadora com menor ruído poderá aumentar a capacidade de medição de radionuclídeos de baixa energia como ^{63}Ni e ^3H .

Como sugestão de novas padronizações são recomendados o ^{207}Bi , ^{125}Sb , ^{237}Np , ^{243}Am , ^{155}Eu e ^{153}Sm , que poderiam ser novas propostas de trabalhos de pesquisa e comparações chaves bilaterais com outros laboratórios de metrologia como o LNHB da França ou o NIST dos Estados Unidos.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BAERG, A. P., MEGHIR S. AND BOWES G. C., 1964, “Extension of the Efficiency Tracing Method for the Calibration of Pure β -Emitters. Measurement of Radioactive Disintegration Rate by the Coincidence Method”, *Int. J. Appl. Radiat. and Isotopes*, 15, pp. 279-287.
- BAERG, A. P., 1966, “Measurement of Radioactive Disintegration Rate by the Coincidence Method”, *Metrologia*, V.2, pp. 23-32.
- BAERG, A. P., 1973, “The Efficiency Extrapolation Method in Coincidence Counting”, *Nuclear Inst. and Method*, V.112, 143.
- BAERG, A. P., MUNZENMAYER. K., BOWES, G.C., 1976, “Live-timed Anti-Coincidence Counting with Extending Dead-Time Circuitry”, *Metrologia*, 12, pp. 77-80.
- BÉ M. M., CISTÉ V., DULIEU C., *et al.*, 2004, *Table de Radionucléides*, BNM – LNHB/CEA.
- BOBIN CH. AND BOUCHARD J., 2006, “A $4\pi(\text{LS})\beta\text{-}\gamma$ Coincidence System Using a TDCR Apparatus in the β -Channel”, *Appl. Radiat. Isot.*, 64, pp.124-130.
- BOBIN CH., BOUCHARD J., HAMON C., IROULART M.G. AND PLAGNARDS J., 2007, “Standardization of ^{67}Ga Using a $4\pi(\text{LS})\beta\text{-}\gamma$ Anti-Coincidence System”. *Appl. Radiat. Isot.* 65, pp. 757-763.
- BOUCHARD. J., Chauvenet B., 1996, “The pulse mixing method applied to activity measurement of ^{85}Sr .”, *Nuclear Inst. and Meth.* 369, pp.380-382.
- BOUCHARD. J., 2000, “MTR2: A Discriminator and Dead-Time Module Used in Counting Systems”, *Appl. Radiat. Isot.* 52, pp. 441-446.
- BOUCHARD. J., 2002, “A New Set of Electronic Modules (NIM standard) for a Coincidence System Using the Pulse Mixing Method”, *Appl. Radiat. Isot.* 56, pp.269-273.
- BRODA, R. 2003, “A Review of the Triple-to Double Coincidence Ratio(TDCR) Method for Standardizing Radionuclides”, *Appl. Radiat. Isot.* 58, pp. 585-594.
- BRODA, R., CASSETTE P., KOSSERT K. 2007, “Radionuclide Metrology Using Liquid Scintillation Counting”, *Metrologia*, 44, S36- S52.

- BRYANT, J., 1962, "Anticoincidence Counting Method for Standardizing Radioactive Materials", *Appl. Radiat. Isot.* 13, pp. 273-276.
- BRYANT, J., 1967, "Advantage of Anticoincidence Counting for Standardization of Radionuclides Emitting Delayed Gamma". *IEEA Symp. Standardization of Radionuclides SM-79/21*.
- CAMPION, P. J., 1959. "The Standardization of Radioisotopes by Beta-Gamma Coincidence Method Using High Efficiency Detectors, *Int. J. Appl. Radiat. and Isotopes* V.4, pp. 232-235.
- CAMPION, P. J., TAYLOR J. G.V. AND MERRIT, J. S., 1960, "The Efficiency Tracing Technique for Eliminating Selfabsorption Errors in $4\pi\beta$ Counting", *Int J. Appl. Radiat. and Isotopes*. V.8, 8-19.
- COX, D. R., ISHAM, V., 1977. "A Bivariate Point Process Connected With Electronic Counters", *Proc. Roy. Soc.* V.356, pp. 149-160.
- DA SILVA, CARLOS J., IWAHARA A., POLEDNA R., BERNARDES E. M. DE O., DI PRINZIO M. A. R. R., LOPES RICARDO T., 2008a. "Standardization of ^{67}Ga , ^{51}Cr and ^{55}Fe by Live-Timed Anti-Coincidence Counting With Extending Dead Time, *Appl. Radiat. Isot.* 66, pp. 231-235.
- DA SILVA, CARLOS J., IWAHARA A., POLEDNA R., BERNARDES E. M. DE O., DI PRINZIO M. A. R. R., DELGADO J. U. AND LOPES RICARDO T., 2008b. "Standardization of ^{241}Am , ^{124}Sb and ^{131}I by Live-Timed Anti-Coincidence Counting with Extending Dead Time, *Appl. Radiat. Isot.* 66, pp. 886-889.
- DE CARLOS J.E., GRANADOS, C. E., 1973, "The SAMAR Shared-Dead-Time Method. A New Approach to Beta-Gamma Coincidence Counting", *Nuclear Inst. and Method*, 112, pp. 209-212.
- DE Roost E., Funk E., Spornol A. and Vaninbroukx R. (1972), "The Decay of ^{65}Zn ", *Z. Physick* 250, 395-412.
- DEBERTIN, K., 1995, "The Art of Realizing the Becquerel", *Appl. Radiat. Isot.* 47, pp. 423-431.
- FUNK E., 1981, "Dead Time Effects of Time Jitter and Metastable Gamma-Transitions in Coincidence Systems", *Nuclear Inst. and Meth.* 179, pp.519-523.

- FUNK E. AND A. NYLANDSTEDT LARSEN, 1983, “The Influence from Low Energy x-Rays and Auger Electrons on $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence Measurements of Electron-capture-decaying Nuclides”, *Appl. Radiat. Isot.* 34, pp. 565-569.
- GANDY, A., 1961, “Mesures Absolutes de l'Activité des Radionuclides par la Méthode des Coïncidences Beta-Gamma à l'aide des Détecteurs de Grande Efficacité. Etude des Coïncidence Instrumentales”, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 11, pp. 75-91.
- GANDY, A., 1963, “Mesure Absolue de l'Activité des Radionuclides por la Méthode des Coïncidences $\beta\text{-}\gamma$ Etude d'une Méthode de Correction Automatique des Erreurs Instrumentals”, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 14, pp. 385-396.
- GRIGORESCU, L., 1973, “Accuracy of Coincidence Measurements”, *Nuclear Inst. and Meth.*, V.112, pp. 151-155.
- G-TORAÑO, E., ROTETA, M., 2004, “Standardization of ^{67}Ga by $4\pi\gamma$ (NaI) and $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence Methods”, *Appl. Radiat. Isot.* 60, pp. 353-356.
- Guia Para Expressão da Incerteza de Medição*, 1998. 2ª Edição Brasileira, ABNT, INMETRO, SBM – Rio de Janeiro.
- ICRU (1994). *Particle counting in Radioactivity Measurements*. ICRU Report 52 (International Commission on Radiation Units and Measurements).
- IWAHARA, A., 1979, *Padronização do ^{63}Ni pela Técnica do Traçador*, dissertação, (Mestrado em ciências), Instituto Militar de Engenharia – Rio de Janeiro.
- IWAHARA A., DA SILVA C. J., BERNARDES E. M. O. ET AL, 2002, *Metrologia de Radionuclídeos*, Apostila do Curso do IRD, 3ª revisão, Rio de Janeiro .
- KAWADA, Y., 1972, *Extended Applications and Improvement of the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Coincidence Method in Standardization of Radionuclides*, ETL report No. 730.
- LEWIS, V. E., WOODS, M. J., GOODIER. I. W., 1972, “The Calibration of the 1383A Ionisation Chamber for ^{67}Ga ”, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 23, pp. 279-283.
- LU HIAOXIA, WANG GUOJUN, 2003, “Absolute Radioactivity Measurement of the ^{60}Co , ^{134}Cs and $^{166\text{m}}\text{Ho}$ by $4\pi\beta\text{-}\gamma$ Anti-Coincidence Method”, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 58, 365-369.
- MALONDRA A. GRAU 1995, *Modelos de Parâmetro Livre em Centelleo Liquido*, Editora CIEMAT, Madri.

- Mini table de Radionucléides*, 2007, Laboratoire National Henri Becquerel ISBN: 978-2-86883-973-2-EDP sciences.
- MIYAHARA, H., MOMOSE, T., WATANABE, T., 1986, "Optimisation of Efficiency Extrapolation Functions In Radioactivity Standardization", *Appl. Radiat. Isot.* V. 37, pp. 1-5.
- Mutual Recognition Arrangement*, 1999, Comitê Internacional de Pesos e Medidas, Bureau International de Pesos e Medidas.
- NCRP (1985). *National Council on Radiation Protection and Measurements. A Handbook of Radioactivity Measurements Procedures*, NCRP Report 58, 2nd ed. (National Council on Radiation Protection and Measurements, Bethesda, Maryland).
- Newsletter* BIPM KCDB 2008, number 9.
- PÉROLAT J.P. 1973, "Some Special Problems in Coincidence Measurement", *Nuclear Inst. and Meth.* 112, pp. 179-185.
- RATEL G., 2008, "Analysis of the Results of the International Comparison of Activity Measurement of a Solution of ⁵⁵Fe", *Appl. Radiat. Isot.* 66, pp. 729-732.
- RYTZ A., 1980, *Activity Measurements of a Solution of ¹³⁷Cs an International Comparison on Efficiency Tracing by ¹³⁴Cs*, Rapport BIPM-80/1, Paris.
- RYTZ, A., 1983, *Minimum Activity and Maximum Impurity Rates for SIR Samples*, Rapport BIPM-83/9.
- SANTRY, D. C., BOWES, G. C., MUNZENMAYER. K., 1987, "Standardization of ⁶⁷Ga by Live Timed Anti-Coincidence Counting With Extended Dead Time", *Appl. Radiat. Isot.* 38, pp. 787-791
- SMITH, D., 1978, "Improved Correction Formulae for coincidence Counting", *Nuclear Inst. and Meth.* 52, pp. 519-523.
- SMITH, D. AND WOODS M. J., 1982, *Report on the International Comparison of Activity Measurements of a Solution of ⁵⁵Fe*, Rapport BIPM-82/2, Paris.
- Vocabulário Internacional de Termos Fundamentais e Gerais de Metrologia*, 2000, 2^a. ed. Brasília, SENAI/DN, 75p.

ANEXO A

PRINCIPAIS PARÂMETROS DE CORREÇÃO UTILIZADOS NA DETERMINAÇÃO DA GRANDEZA ATIVIDADE

A.1 Tempo Morto

O termo tempo morto normalmente indica o tamanho do intervalo de tempo que segue ao registro de uma contagem no qual o circuito não responde. O tempo morto, por conseguinte sempre origina em perda de contagem.

O detalhado mecanismo pelo qual o tempo morto afeta a seqüência original de pulsos produzidos em um dado experimento depende da estatística de contagem e do comportamento do circuito eletrônico. Em geral, são utilizados dois tipos de circuito para tempo morto:

- 1- fixo
- 2- extensível

O tempo morto fixo é caracterizado por ser fixado eletronicamente e este valor deve permanecer constante independente da taxa de contagem. No tempo morto extensível estabelecemos um valor mínimo e este valor sofre incremento com o aumento da taxa de contagem da amostra. O comportamento destes tipos de tempo morto é ilustrado na figura A.1.

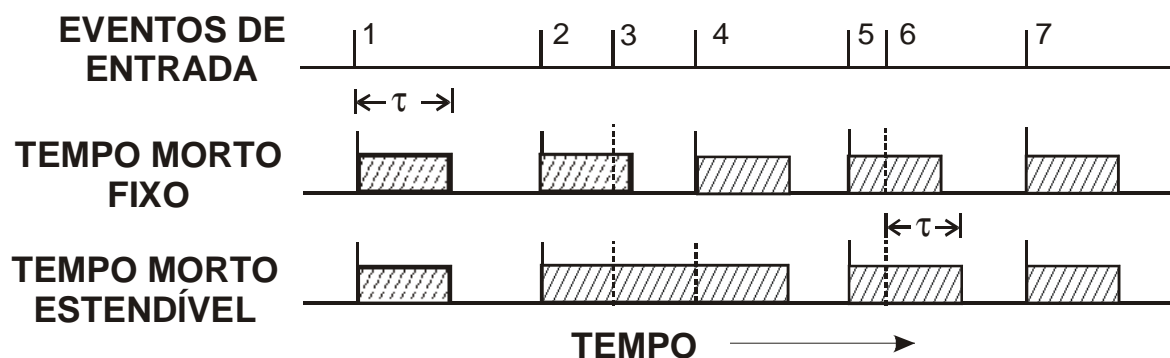


Figura A.1 Comportamento do Tempo Morto Extensível e fixo

A.1.1 Tempo Morto em Série

Em geral torna-se impraticável colocar, no sistema, a unidade fixadora de tempo morto imediatamente após o detector. A posição ideal será imediatamente antes dos “scalers” ou contadores. Se isto não for feito, o tempo morto do sistema pode mudar com a taxa de contagem devido a componente extensível. O valor imposto pelo circuito definidor de tempo morto deve ser maior que o valor de tempo morto de cada unidade eletrônica(NCRP,1985).

Alguns autores postulam que todo circuito possui um tempo morto cujo valor pode variar com a taxa de contagem. Para taxas de contagem baixas este efeito é desprezível, porém com taxas de contagem elevadas o efeito deve ser estudado cuidadosamente. Em situações práticas fica difícil distinguir entre:

- a- flutuação da taxa de contagem devido a flutuação do tempo morto ou ao comportamento do definidor de tempo morto (como extensível, fixo) e
- b- uma aparente dependência causada por mudança de ganho, nível de discriminação, flutuação de linha de base, empilhamento, amplitude de pulso para taxas de contagens elevadas.

O projeto do MTR2 foi desenvolvido levando em consideração tais possíveis interferências e os meios para reduzir tais efeitos, conforme foi mostrado por Bouchard (BOUCHARD, 2000).

A.1.2 Métodos de Medição de Tempo Morto

A escolha do método adequado para a medição de tempo morto é dependente da exatidão requerida. Uma cuidadosa avaliação da perda de contagem para um sistema recém implantado em um laboratório requer um tempo razoável; porém para uma simples verificação se houve mudança significativa de um valor previamente determinado, no geral são necessários apenas alguns minutos (NCRP, 1985).

a- Método das Duas Fontes

Duas fontes de atividade iguais podem gerar uma perda de contagem adequada para a determinação do tempo morto. As amostras são medidas na seguinte seqüência de contagem de forma a minimizar a incerteza de posicionamento: (1), (1 + 2), (2) possuindo respectivamente as taxas de contagens, n_1 , $n_{1,2}$ e n_2 , sendo n_b a contribuição

de radiação de fundo. Então seja τ o tempo morto não estendível e independente da taxa de contagem teremos a expressão 2.3 para o cálculo de τ

$$\tau = \left\{ 1 - \left[1 - (\Delta - n_b) q / p^2 \right]^{1/2} \right\} p / q \quad (\text{A.1})$$

onde,

$$\Delta = n_1 + n_2 + n_{12} \quad (\text{A.2})$$

$$p = n_1 n_2 - n_b n_{12} \quad (\text{A.3})$$

$$q = n_1 n_2 n_{12} + n_b (n_1 n_2 - n_1 n_{12} - n_2 n_{12}) \quad (\text{A.4})$$

O método das duas fontes tem a vantagem de fazer uma avaliação realística do tempo morto total, pois usa uma distribuição de pulsos real. Para testar a dependência da taxa de contagem pode-se recorrer ao uso de dois ou três pares de fontes.

Para o caso do tempo morto estendível tem-se uma expressão aproximada para o tempo morto:

$$\tau \cong (n_{12} / 2n_1 n_2) \ln \left[(n_1 + n_2) / n_{12} \right] \quad (\text{A.5})$$

b- Método da Fonte e Pulsador

Este método é semelhante ao método das duas fontes, o sinal do gerador de pulsos é injetado na entrada de testes do pré-amplificador. Seja a taxa de contagem da fonte n_s , do pulsador n_p e n_{sp} a soma dos dois então se o tempo morto é não estendível e independente da taxa de contagem tem-se que τ será:

$$\tau = \left[1 - \left(1 - \Delta / n_p \right)^{1/2} \right] / n_s \quad (\text{A.6})$$

onde,

$$\Delta = n_s + n_p + n_{sp} \quad (\text{A.7})$$

A.2. Tempo de Resolução

A determinação do tempo de resolução em um sistema de coincidência é obtida contando-se os pulsos provenientes do contador proporcional 4π e de um gerador de pulsos no canal gama e observando-se a taxa de coincidências que é devida inteiramente

a coincidências acidentais (IWAHARA *et al*, 2002), para este experimento, utiliza-se um pulsador, e uma fonte radioativa. O tempo de resolução é determinado pela equação 2.9.

Onde,

τ_R – é o tempo de resolução

N_β – é a taxa de contagem no canal beta;

N_γ – é a taxa de contagem no canal gama;

N_c – é a taxa de contagem no canal de coincidência.

$$\tau_R = \frac{N_c}{2 N_\beta N_\gamma} \quad (\text{A.8})$$

A.3 Radiação de Fundo

A correção devido à radiação de fundo é feita por subtração da taxa de contagem total da amostra, menos a taxa de contagem obtida do frasco ou suporte sem a amostra da solução radioativa. As principais contribuições de radiação de fundo são a radiação cósmica e as contaminações radioativas dos materiais que compõem a blindagem e o detector.

A.4 Decaimento

Devido ao processo de decaimento dos materiais radioativos, deve-se introduzir as correções de decaimento levando-se em consideração, o tempo de contagem, a meia-vida, a data e a hora utilizada como referência em uma dada padronização de radionuclídeo.

$$A = A_o e^{-\lambda t} \cdot f_{\Delta t_e} \quad (\text{A.9})$$

onde,

A =atividade da amostra após ter decorrido um intervalo de tempo t;

A_o =atividade da amostra no instante inicial de observação;

$T_{1/2}$ = meia-vida do radionuclídeo em estudo;

λ =constante de decaimento;

$f_{\Delta t_c}$ = fator de correção durante o tempo de contagem t_c .

$$\lambda = \ln(2) / T_{1/2} \quad (\text{A.10})$$

$$f_{\Delta t_c} = \frac{\lambda t_c}{1 - e^{-\lambda t_c}} \quad (\text{A.11})$$

A.5 Elétrons de Conversão Interna

A conversão interna da transição gama contribui com a taxa de contagem n_{ce} observada no canal β e pode ser expressa pela seguinte relação Baerg (BAERG, 1966),

$$n_{ce} = N_0 (1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_{ce} \frac{\alpha}{1 + \alpha} \quad (\text{A.12})$$

onde n_{ce} é a taxa de contagem de elétrons de conversão no canal β e α o coeficiente de conversão interna total, ε_{ce} é a eficiência para elétrons de conversão interna. Normalmente a eficiência para elétrons de conversão pode ser considerada 100%. Entretanto, para energias menores do que 200 keV, o evento pode ser detectado por meio do raio X associado ou do elétron Auger e, deste modo pode-se substituir ε_{ce} por,

$$\varepsilon_{ce} = \sum_i \alpha_i [\varepsilon_i + (1 - \varepsilon_i) \varepsilon(x, A)_i] \quad (\text{A.13})$$

onde,

α_i coeficiente de conversão interna associado à transição i

ε_i eficiência de detecção para o nível i do elétron de conversão

$\varepsilon(x, A)$ probabilidade de detecção de pelo menos um raio X ou elétron Auger no detector beta, acompanhada da emissão do elétron de conversão da camada i .

Expressão sugerida por Baerg (BAERG, 1966).

As taxas de contagem nos canais gama e de coincidência serão,

$$N_{\gamma} = N_0 \cdot \varepsilon_{\gamma} / (1 + \alpha) \quad (\text{A.14})$$

$$N_c = \frac{N_0 \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{(1 + \alpha)} \quad (\text{A.15})$$

A.6 Sensibilidade Gama do Detector Proporcional, $\varepsilon_{\beta\gamma}$

Normalmente, o detector proporcional destinado à detecção das radiações beta tem uma pequena sensibilidade para a radiação γ que, em aplicações metrológicas, deve ser considerada. Assim, a taxa contagem adicional deve ser obtida por meio da seguinte relação,

$$n_{\beta\gamma} = \frac{N_0 (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_{\beta\gamma}}{(1 + \alpha)} \quad (\text{A.16})$$

A.7 Sensibilidade Beta do Detector Gama

A probabilidade de ocorrência deste evento é muito pouco provável, pois entre a fonte e o detector gama, existe suficiente material absorvedor. Além disso, uma segunda garantia para eliminação do fenômeno é obtido por meio do ajuste da energia do canal gama, que permite excluir o “bremsstrahlung” ou radiação de freamento.

A.8 Coincidências Acidentais

Devido à limitação do valor do tempo morto das unidades de coincidência sempre ocorrerão coincidências fortuitas. Existem algumas expressões utilizadas para estimar a taxa de ocorrência deste tipo de evento. A mais utilizada é a proposta por Campion,

$$N_c^* = \frac{N_c - 2 \tau_r N_{\beta}' N_{\gamma}'}{1 - \tau_r (N_{\beta}' + N_{\gamma}')} \quad (\text{A.17})$$

onde,

N_c^* é a taxa de contagem de coincidência corrigida para radiação de fundo

τ_r é o tempo de resolução

N_{β}' é a taxa de contagem observada no canal β

N_{γ}' é a taxa de contagem observada no canal γ .

ANEXO B

EQUAÇÃO DE COX-ISHAN

B.1 Algoritmo de Smith Baseado no Trabalho de Cox-Ishan

$$N_o = \frac{N'_\beta N'_\gamma \left[\rho_1 e^{\rho_1 \tau_\beta} e^{(\rho_2 - \rho_1)(\tau_r - \delta)} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau_r} e^{(\rho_1 - \rho_2)(\tau_r + \delta)} + \frac{N_c''}{P_1 P_2} (e^{\rho_1 \tau_\beta} - e^{\rho_2 \tau_r}) \right]}{N_c'' (\rho_1 e^{\rho_1 \tau_\beta} - \rho_2 e^{\rho_2 \tau_r}) (1 + K_e)} \frac{\Lambda f_\lambda}{m} \quad (\text{B.1})$$

$$\Lambda = e^{-\lambda \Delta t} \quad (\text{B.2})$$

onde,

Δt é o intervalo de tempo decorrido entre a data de medição e a data de referência, usualmente dado em dias.

λ é a constante de decaimento característica do radionuclídeo definida pela seguinte relação,

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \quad (\text{B.3})$$

e $T_{1/2}$ é a meia-vida do radionuclídeo.

$$f_\lambda = \frac{\lambda \Delta t_c}{1 - e^{-\lambda \Delta t_c}} \quad (\text{B.4})$$

f_λ é a correção para decaimento durante a contagem,

Δt_c é o intervalo de tempo de contagem.

$$N_c'' = N_c - 2 \tau_r N'_\beta N'_\gamma \quad (\text{B.5})$$

onde,

N_c é a taxa de contagem no canal de coincidência corrigida para radiação de fundo

$$P_1 = 1 - \tau_\beta N'_\beta \quad (\text{B.6})$$

$$P_2 = 1 - \tau_\beta N'_\gamma \quad (\text{B.7})$$

Determinação de ρ_1

$$\rho_1 = \frac{N'_\beta}{1 - \tau_\beta N'_\beta} - b_\beta \quad (\text{B.8})$$

onde:

b_β é a taxa de contagem devida à radiação de fundo no canal β .

Determinação de ρ_2

$$\rho_2 = \frac{N'_\gamma}{1 - \tau_\gamma N'_\gamma} - b_\gamma \quad (\text{B.9})$$

onde:

b_γ é a taxa de contagem devida à radiação de fundo no canal γ .

Determinação da eficiência β

$$\varepsilon_\beta = \frac{N_\beta}{N_o (1 - \tau_\beta N_\beta)} \quad (\text{B.10})$$

onde,

ε_β é a eficiência de contagem no canal β

Como ε_β está definida em função de N_0 e é necessário determinar ε_β para se aplicar o método de extrapolação de eficiência. Pode-se resolver o problema por meio de um processo iterativo ou calcular o valor de ε_β por aproximação por meio de,

$$\varepsilon_\beta = \frac{N_c^*}{N_\gamma^*} \quad (\text{B.11})$$

$$N_c^* = \frac{(N'_c - 2\tau_r N'_\beta N'_\gamma)(2 - \tau_\beta N'_\beta - \tau_\gamma N'_\gamma)}{[2 - \tau_\beta N'_\beta - \tau_\gamma N'_\gamma + 2\tau'_c N'_c - 2(\tau_r N'_\beta + \tau_r N'_\gamma)](1 - \tau_\beta N'_\beta)(1 - N'_\gamma)} - B_c \quad (\text{B.12})$$

sendo, B_c a taxa de contagem de radiação de fundo.

$$N_{\gamma}^* = \frac{N_{\gamma}'}{1 - \tau_{\gamma} N_{\gamma}'} - B_{\gamma} \quad (\text{B.13})$$

e B_{γ} é a taxa de contagem de radiação de fundo no canal γ

Determinação da eficiência γ

$$\varepsilon_{\gamma} = \frac{N_{\gamma}}{N_o (1 - \tau_{\gamma} N_{\gamma})} \quad (\text{B.14})$$

onde,

ε_{γ} é a eficiência de contagem no canal γ

Correção para esquema de decaimento

$$K_e = C \frac{1 - \varepsilon_{\beta}}{\varepsilon_{\beta}} \quad (\text{B.15})$$

onde,

C constante que depende do esquema de decaimento e da geometria dos detectores.

O valor de C, é o coeficiente angular da curva de extrapolação, quando se aplica o método de extrapolação.

ANEXO C

PRINCIPAIS TIPOS DE DETECTORES UTILIZADOS EM METROLOGIA DE RADIONUCLÍDEOS

C.1 Detectores à Gás

C.1.1 Detector Proporcional

O detector proporcional utilizado neste trabalho possui geometria 4π ou seja, uma eficiência geométrica de 100%. Para emissores alfa e emissores beta de alta energia pode ser conseguida uma eficiência de contagem de 100%, esta eficiência é função também da técnica de preparação de amostras.

C.1.2 Câmara de Ionização

As maiores aplicações dos sistemas com câmara de ionização são nos chamados ativímetros que são utilizados em hospitais e clínicas de medicina nuclear nos quais uma câmara do tipo reentrante ou poço é acoplada a um sistema eletrônico que efetua diretamente a leitura em atividade. Neste sistema, um eletrômetro é acoplado a um circuito que permite fazer a seleção do radionuclídeo por meio de uma chave ou potenciômetro.

Nos laboratórios nacionais estes sistemas são utilizados como sistemas de referência. A câmara é acoplada a um eletrômetro e um cronômetro para efetuar-se a medição da carga ou corrente produzida por um padrão. Para a verificação de sua operacionalidade ou realizar testes de estabilidade utiliza-se uma fonte de meia-vida longa como o ^{137}Cs e ^{226}Ra .

A atividade por unidade de massa de cada radionuclídeo é determinada pela relação entre a corrente e o fator de calibração determinado para o radionuclídeo em estudo expressa pela equação C.1.

$$\dot{A} = \frac{\overline{I}_A - \overline{I}_B}{F \cdot m} f_N \quad (\text{C.1})$$

onde:

F fator de calibração dado em A/Bq

m	massa da solução padrão em g (determinada por pesagem diferencial)
f_N	fator de normalização que normaliza a resposta do sistema para uma data de referência
I_A	Intensidade da corrente produzida pela amostra a ser calibrada
I_B	Intensidade da corrente devido a radiação de fundo
\dot{A}	atividade por unidade de massa da solução (Bq/g)

Devido à sua alta estabilidade estes sistemas são utilizados pelos laboratórios nacionais para armazenar resultados de padronizações primárias bem como os resultados das comparações-chaves.

C.2 Detector à Semicondutor

Para a verificação de contaminantes que possam interferir na padronização dos radionuclídeos são utilizados detectores de germânio com alta eficiência.

C.3 Detectores Cintiladores

Cintiladores são materiais sólidos líquidos ou gasosos que produzem centelhas de luz ou cintilação quando a radiação ionizante interage com eles. A quantidade de luz produzida na cintilação é pequena e assim, necessita de dispositivos de captação da luz e fornecimento de sinal amplificado denominados de fotomultiplicadoras. Nas fotomultiplicadoras comerciais são comuns ganhos de sinal da ordem de 10^6 .

C.3.1 Cintiladores Orgânicos

Os compostos orgânicos cintiladores mais utilizados para a detecção de elétrons são o antraceno, stibileno e terphenyl. Atualmente tem maior importância os cintiladores líquidos e os plásticos nos quais um material cintilador é incorporado. Estes cintiladores líquidos e plásticos podem ser feitos na forma desejada e com volumes apropriados para cada aplicação.

C.3.2 Cintiladores Líquidos

a- Composição

Um cintilador líquido consiste basicamente de uma substância, dissolvida em um solvente orgânico, que produz cintilação quando interage com a radiação ionizante. Outros componentes são também adicionados como, solvente secundário, cintilador secundário, extracto, surfactante, e extintor para adaptar o cocktail cintilador as aplicações usuais. A composição química de um cocktail cintilador deve permitir a eficiente transferência de energia entre o solvente e o cintilador, possibilitar ainda a coexistência de solução radioativa em meio aquoso com o solvente orgânico. Estes requisitos podem ser contraditórios o que dificultam o projeto de um bom cintilador líquido CL.

O solvente é o principal componente em um cintilador cuja função principal é absorver a energia da partícula carregada emitida pelo radionuclídeo (BRODA *et al*, 2007) e propagar esta energia à molécula fluorescente. Os solventes dos cintiladores líquidos são moléculas orgânicas aromáticas. O benzeno e o tolueno foram bastante usados, porém hoje, prefere-se trabalhar com compostos que apresentam menor toxidez como xileno e pseudocumeno.

O cintilador primário apresenta concentração entre 5 e 10 g L⁻¹ do solvente. Ele é usado para a conversão da energia de excitação da molécula do solvente em luz. O composto mais comum utilizado nesta aplicação é o 2,5-difeniloxazole (PPO).

O Cintilador secundário que pode apresentar concentração de 0,5 g L⁻¹ do solvente é usado como modificador do comprimento de onda, para adaptar o espectro de emissão à máxima sensibilidade do fotocátodo da fotomultiplicadora. Para este propósito o 1,4 bis-(2-(5-feniloxazole))-benzeno (POPOP) é utilizado. Nas fotomultiplicadoras mais modernas os fotocátodos bi-álcalinos apresentam uma máxima sensibilidade na faixa de 380 a 390 nm que coincidem com o máximo de emissão dos cintiladores primários (MALONDRA, 1995).

b- Transferência de Energia no Cintilador

As partículas carregadas emitidas no meio cintilador interagem com suas moléculas ao longo de seu percurso. Como resultado desta interação as partículas carregadas perdem energia cinética e algumas moléculas do meio experimentam transformações tais como ionização, formação de radicais livres e excitação ou ruptura em fragmentos neutros ou ionizados.

As moléculas ionizadas e as excitadas, dependendo de suas concentrações, originam diferentes tipos de reações: decomposição, neutralização, e formação de radicais livres. Ocorrerão também outros fenômenos, tais como, a fluorescência, emissão de raios X de baixa energia, migração ou transferência de energia não radiativa. Deve ser observado que a maior parte da energia cinética das partículas que interage com o meio se degrada sob a forma de energia térmica e somente uma pequena parte produz fótons de luz.

Os processos que mais contribuem para a produção de luz são a excitação molecular e a ionização. A geração de íons se deve principalmente, a duas causas distintas: ao choque direto do elétron com outro elétron ligado à molécula do cintilador, ou a excitação de uma molécula mediante a transferência de energia superior ao seu potencial de ionização.

c- Extinção

O termo extinção (quenching) é usado para descrever vários fenômenos físicos ou químicos que reduzem a produção de luz no CL. Extinção química é causada pela adição de substâncias que atuam quimicamente como inibidor da produção de moléculas excitadas do solvente, levando ao aumento da produção de calor ao invés de luz. Os agentes de extinção mais utilizados são o nitrometano, tetracloreto de carbono e clorofórmio estes últimos com maior toxidez.

d- Composição dos Cintiladores Comerciais

A composição dos cintiladores comerciais é considerada segredo comercial. Contudo alguns fabricantes fornecem a composição média dos elementos que os compõe. A tabela C.1 ilustra estes valores. Deve-se observar que existem variações em um mesmo produto devido a pequenas variações em sua composição. Devido a este tipo

de característica dos CL comerciais alguns laboratórios preferem desenvolver o seu próprio cintilador.

Tabela C.1 - Composição dos Cintiladores Comerciais.

Elemento	C	H	N	O	P	S	Na	d g/cm ³	Z/A	Peso Mol.
Ultima Gold	16,81	24,54	0,040	1,52	0,11	0,02	0,02	0,98	0,5459	255,76
Ultima Gold XR	18,11	29,80	0,035	2,83	0,11	0,03	0,03	0,99	0,5476	297,98
Ultima Gold AB	18,67	28,49	0,010	2,53	0,01	0,00	0,00	0,98	0,5485	293,47
Ultima Gold LLT	18,57	28,43	0,010	2,56	0,01	0,00	0,00	0,98	0,5486	292,68
Insta-Gel Plus	18,53	30,93	0,006	3,90	0,00	0,00	0,00	0,95	0,5490	315,71
Hionic-Fluor	10,83	18,77	0,060	1,97	0,18	0,04	0,04	0,95	0,5449	188,87

C.3.3 Cintiladores de NaI(Tl)

Entre os cintiladores inorgânicos o NaI ativado com 0,1 – 0,2 % de Tálcio é, há muito tempo, o mais utilizado. A alta densidade do NaI – 3,7 gcm⁻³ e o alto Z do iodo confere a este tipo de detector uma alta eficiência para a detecção da radiação gama. Cristais selados de várias formas e tamanhos podem ser adquiridos comercialmente, acoplados a refletores de luz e a fotomultiplicadoras. Uma das dimensões mais usuais deste tipo de detector para medição de radiação gama é 7,5 cm de diâmetro por 7,5 cm de altura. Um outro tipo usual é o que possui uma cavidade reentrante (poço) para medição de fontes líquidas ou sólidas com geometria próxima de 4π .

ANEXO D
TABELA DE RADIONUCLÍDEOS
LABORATOIRE NATIONAL HENRI BECQUEREL
2007

^{51}Cr $T_{1/2}$: 27,703 dias

Descendentes: (ϵ) ^{51}V

Principais Emissões

Raio x – (4 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
4,94	6,79	$X_{k\alpha 2}$	^{51}V
4,95	13,36	$X_{k\alpha 1}$	^{51}V
5,44	2,69	$X_{k\beta 1}$	^{51}V

Gama (1 emissão)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
320,08	9,87	γ	^{51}V

Modo de Produção

$^{50}\text{Cr}(n,\gamma) ^{51}\text{Cr}$

Impurezas possíveis

^{42}K

^{54}Mn $T_{1/2}$ 312,3 dias

Descendentes: (ϵ) ^{54}Cr , (β^-) ^{54}Fe

Principais Emissões

Elétrons – 4 emissões

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
5,3	63,3	Auger-K	^{54}Cr

x – 4 emissões

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
5,41	7,66	$X_{k\alpha 2}$	^{54}Cr
5,42	15,0	$X_{k\alpha 1}$	^{54}Cr
5,95	3,05,0	$X_{k\beta 1}$	^{54}Cr

Gama (1 emissão)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
834,84	99,9764	gama	^{54}Cr

Modo de Produção

$^{53}\text{Cr}(d,n)$ ^{54}Mn

$^{54}\text{Fe}(n,p)$ ^{54}Mn

$^{51}\text{V}(\alpha,n)$ ^{54}Mn

Impurezas possíveis

^{48}V , ^{52}Mn

^{51}Cr , ^{55}Fe , ^{57}Fe

-

^{55}Fe $T_{1/2}$: 2,747 anos

Descendentes: (ϵ) ^{55}Mn

Principais Emissões

Elétrons – (2 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
5,7	60,1	Auger K	^{55}Mn

X – (4 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
5,89	8,45	$X_{k\alpha 2}$	^{55}Mn
5,9	16,57	$X_{k\alpha 1}$	^{55}Mn
6,51	3,40	$X_{k\beta 1}$	^{55}Mn

Gama (1 emissão)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
125,95	0,00000013	gama	^{55}Mn

Modo de Produção

Impurezas possíveis

$^{54}\text{Fe}(n,\gamma) ^{55}\text{Fe}$

^{59}Fe

$^{54}\text{Fe}(d,p) ^{55}\text{Fe}$

^{55}Co

$^{55}\text{Mn}(p,n) ^{55}\text{Fe}$

-

^{67}Ga $T_{1/2}$ 3,2613 dias

Descendentes: (ϵ) ^{67}Zn

Principais Emissões

Elétrons – 20 emissões

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
8,4	60,3	AugerK	^{67}Zn
83,65	28,4	ec K	^{67}Zn
92,7	3,55	ec L	^{67}Zn

X – (5 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
8,62	17,0	$X_{k\alpha 2}$	^{67}Zn
8,64	33,0	$X_{k\alpha 1}$	^{67}Zn
9,61	7,09	$X_{k\beta 1}$	^{67}Zn

Gama (10 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
91,27	3,07	γ	^{67}Zn
93,31	37,8	γ	^{67}Zn
184,58	20,9	γ	^{67}Zn
208,95	2,37	γ	^{67}Zn
300,22	16,8	γ	^{67}Zn
393,53	4,66	γ	^{67}Zn

Modo de Produção

$^{67}\text{Zn}(d, 2n) ^{67}\text{Ga}$

$^{67}\text{Zn}(p, n) ^{67}\text{Ga}$

Impurezas possíveis

^{66}Ga

^{66}Ga

^{67}Ga $T_{1/2}$ 3,2613 dias

$^{68}\text{Zn}(p, 2n) ^{67}\text{Ga}$ -

^{124}Sb $T_{1/2}$ 60,20 dias

Descendentes: (β^-) Te-124

Principais Emissões

Beta – 21 emissões

Energia máxima(keV)	Energia média(keV)	Intensidade (%)
210,8	58,5	8,80
610,7	193,9	51,3
865,2	291,8	3,97
946,6	324,2	2,11
1579	591,6	4,9
1655,9	625,5	2,63
2301,8	916	23,6

Gama (68 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
602,73	97,89	γ	^{124}Te
645,86	7,42	γ	^{124}Te
709,31	1,37	γ	^{124}Te
713,78	2,28	γ	^{124}Te
722,78	10,80	γ	^{124}Te
790,73	0,74	γ	^{124}Te
968,20	1,88	γ	^{124}Te
1045,13	1,82	γ	^{124}Te
1325,51	1,55	γ	^{124}Te
1355,11	1,03	γ	^{124}Te

^{124}Sb $T_{1/2}$ 60,20 dias

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
---------------	-----------------	------	--------

1368,16	2,61	γ	^{124}Te
1436,56	1,20	γ	^{124}Te
1489,0	0,68	γ	^{124}Te
1690,98	47,6	γ	^{124}Te
2090,94	5,48	γ	^{124}Te
Modo de Produção			Impurezas possíveis
$^{123}\text{Sb}(n,\gamma) \ ^{124}\text{Sb}$			^{122}Sb

^{131}I $T_{1/2}$ 8,0233 dias

Em equilíbrio com: ^{131m}Xe

Descendentes: (β^-) ^{131}Xe

Principais Emissões

Elétron – 17 emissões

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
45,62	3,53	ec K	^{131}Xe
329,93	1,55	ec K	^{131}Xe

Beta – (6 emissões)

Energia máxima(keV)	Energia média(keV)	Intensidade (%)
247,9	69,35	2,114
333,8	96,61	7,36
606,3	191,59	89,4

Raio x- (5 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
29,46	1,54	X _{kec}	^{131}Xe
29,78	2,85	X _{kec}	^{131}Xe

Gama (19 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
80,19	2,607	γ	^{131}Xe
284,31	6,06	γ	^{131}Xe
364,49	81,2	γ	^{131}Xe
636,99	7,26	γ	^{131}Xe
722,91	1,796	γ	^{131}Xe

Modo de Produção

Impurezas possíveis

^{131}I $T_{1/2}$ 8,0233 dias

Produto de fissão

^{121}Te , $^{121\text{m}}\text{Te}$,

Modo de Produção

Impurezas possíveis

$^{130}\text{Te}(\text{n},\gamma)$ ^{131}Te

$^{121\text{m}}\text{Te}$, $^{125\text{m}}\text{Te}$

^{127}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$

$^{131}\text{Te}(\beta^-)$ ^{131}I

$T_{1/2}$ 25 minutos

^{177}Lu $T_{1/2}$ 6,647 dias

Descendentes: (β^-) ^{177}Hf

Principais Emissões

Elétron – (19 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
7,8	8,75	L auger	^{177}Hf
47,60	5,07	K ec	^{177}Hf
101,68	6,84	L ec	^{177}Hf
110,35	1,71	M ec	^{177}Hf

Beta – (4 emissões)

Energia máxima(keV)	Energia média(keV)	Intensidade (%)
177	47,66	11,64
385,4	111,7	9,1
498,3	149,4	79,3

Raio x- (5 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
8,93	3,18	x_L	^{177}Hf
54,61	1,59	$X_{k\alpha 2}$	^{177}Hf
55,79	2,78	$X_{k\alpha 1}$	^{177}Hf

Gama (6 emissões)

Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
112,95	6,20	γ	^{177}Hf
208,37	10,38	γ	^{177}Hf

Modo de Produção

Impurezas possíveis

^{176}Lu (n, γ) ^{177}Lu

-

^{241}Am $T_{1/2}$ 432,6 anos

Descendentes: (α^-) ^{177}Hf

Principais Emissões

Alfa (23 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
5388,26	1,66	α	^{241}Am
5442,86	13,23	α	^{241}Am
5485,54	84,45	α	^{241}Am

Elétron – (67 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
9,8	36	Auger L	^{237}Np
6,3	14,7	ec L	^{237}Np
13,2	17,3	ec L	^{237}Np
21,6	3,8	ec M	^{237}Np
22,7	1,6	ec L	^{237}Np
23,4	8,6	ec L	^{237}Np
28,5	4,3	ec M	^{237}Np
37,52	31,3	ec L	^{237}Np
38,7	2,3	ec M	^{237}Np
54,8	8,09	ec M	^{237}Np

Raio x- (9 emissões)

Energia(keV)	Intensidade(%)	Tipo	Origem
11,89	0,848	x_L	^{237}Np
13,85	13,03	$x_{L\alpha}$	^{237}Np
17,06	18,86	$x_{L\beta}$	^{237}Np

^{241}Am $T_{1/2}$ 432,6 anos

21,16	4,81	$x_{L\gamma}$	^{237}Np
Gama (178 emissões)			
Energia (keV)	Intensidade (%)	Tipo	Origem
26,34	2,40	γ	^{237}Np
59,54	35,78	γ	^{237}Np
Modo de Produção		Impurezas possíveis	
$^{241}\text{Pu} (\beta^-) ^{241}\text{Am}$		-	