



PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DE RADIONUCLÍDEOS EMISSORES DE PÓSITRONS
POR ESPECTROMETRIA GAMA COM O MÉTODO PICO-SOMA

Estela Maria de Oliveira

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
Março de 2012

PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DE RADIONUCLÍDEOS EMISSORES DE PÓSITRONS
POR ESPECTROMETRIA GAMA COM O MÉTODO PICO-SOMA

Estela Maria de Oliveira

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

Examinada por:



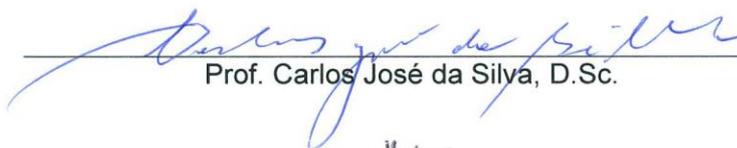
Prof. Ricardo Tadeu Lopes, D.Sc.



Prof. Akira Iwahara, D.Sc.



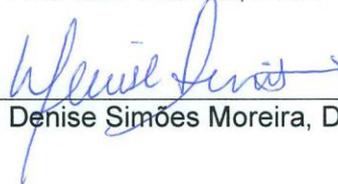
Prof. Edgar Francisco Oliveira de Jesus, D.Sc.



Prof. Carlos José da Silva, D.Sc.



Prof. Luiz Tauhata, D.Sc.



Prof. Denise Simões Moreira, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

MARÇO DE 2012

Oliveira, Estela Maria de

Padronização Absoluta de Radionuclídeos Emissores de Pósitrons por Espectrometria Gama com o Método Pico-Soma/ Estela Maria de Oliveira. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2012.

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

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2012.

Referências Bibliográficas: p.65-71.

1. Método Pico-Soma. 2. Padronização Absoluta. 3. Emissores de Pósitrons. I. Lopes, Ricardo Tadeu et al. II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título

*Às minhas filhas,
Deborah Oliveira Bernardes e Lisa Oliveira Bernardes.*

*À minha mãe,
Maria de Deus Oliveira.*

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), pela oportunidade de realização deste trabalho.

Aos professores Ricardo Tadeu Lopes e Akira Iwahara pela orientação, confiança, dedicação, apoio e paciência na realização deste trabalho.

Ao Chefe do Serviço de Metrologia de Radionuclídeos (SEMRA), Dr. José Ubiratan Delgado pelo apoio oferecido e pela ajuda nas correções dos textos dos trabalhos submetidos.

À DIRA (Divisão de Radiofármacos) do IEN e todos seus colaboradores, que gentilmente forneceram as amostras de ^{18}F quando necessário.

Ao grande amigo Roberto Poledna pela inestimável colaboração no trabalho, pelo carinho, amizade e boa vontade em todas as discussões e todas as vezes que precisei de ajuda.

Às minhas filhas, Deborah e Lisa, por todas as vezes que não pude estar ao lado delas para me dedicar a este trabalho e pela compreensão que tive como resposta todas as vezes que assim precisei.

Aos companheiros do SEMRA do Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), por me proporcionarem um ambiente favorável à execução deste trabalho. São eles: Adelaide, Akira, Almir, Antônio Eduardo, Carlos José, Denise, Jamir, José Ubiratan, Luiz Tauhata, Margareth, Maria Antonieta, Maria Cândida, Maura, Nadjara, Paulo Alberto, Poledna, Ronaldo, Regio.

À minha grande amiga Maria Antonieta Ramos Ribas Di Prinzi, que foi referência por diversas vezes durante minha vida, pelo amor, amizade e apoio sempre, mesmo estando distante devido à aposentadoria.

Ao amigo Carlos José da Silva pela amizade, pela participação nas medições do anti-coincidência e nas discussões dos trabalhos.

Ao grande amigo Antônio Eduardo de Oliveira, por todas as vezes que atravessou a linha amarela, na maior rapidez possível, para fazer chegar às minhas mãos o ^{18}F cedido pelo IEN.

À grande amiga Margareth Maria de Araújo pelo companheirismo, amizade e paciência nas noites passadas em claro realizando as medições do ^{18}F .

Ao amigo Regio dos Santos Gomes, que mesmo recém-chegado ao SEMRA, não mediu esforços para ajudar na realização deste trabalho, muitas vezes executando o meu trabalho para que eu pudesse me dedicar a este.

Ao meu amigo de turma e trabalho Jamir dos Santos Loureiro pelo companheirismo e paciência comigo nos estudos das disciplinas cursadas.

Às funcionárias Liliane e Josevalda da secretaria do Programa de Engenharia Nuclear da COPPE pelo apoio na área acadêmica.

Aos companheiros da Engenharia Mecânica do IRD, pelo pronto atendimento na confecção dos suportes das fontes e pela atenção e paciência em todas as vezes que precisei rapidez. São eles: Adilson, Ailson, Carlos Roberto, Eduardo, Fabricio, Francisco, Gilmara, Jair, Luiz Aurelio, Moacyr, Nilton, Ricardo e Sergio.

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

PADRONIZAÇÃO ABSOLUTA DE RADIONUCLÍDEOS EMISSORES DE PÓSITRONS POR ESPECTROMETRIA GAMA COM O MÉTODO PICO-SOMA

Estela Maria de Oliveira

Março/2012

Orientadores: Ricardo Tadeu Lopes
Akira Iwahara

Programa: Engenharia Nuclear

O método de medição conhecido como pico-soma foi implementado no Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes para a padronização absoluta de soluções radioativas de ^{18}F . A padronização absoluta usando um método simples, fácil e eficiente permitirá a realização de controle de qualidade nas rotinas de aplicação do ^{18}F nos Serviços de Medicina Nuclear no Brasil.

Além do ^{18}F , outros radionuclídeos emissores de pósitron (^{22}Na , ^{65}Zn e ^{68}Ge) foram também medidos neste trabalho. Para tal, foram montados dois tipos de arranjos experimentais. Para validação do método foram usados o método de Anti-coincidência $4\pi\text{CL-Nal(Tl)}$ com cronometragem em tempo morto extensível e o método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. Os resultados encontrados mostram que tanto o ^{18}F como os outros radionuclídeos podem ser padronizados pelo método pico-soma. Este método apresenta-se como uma alternativa viável, visto que fornece medições em tempo inferior em comparação aos métodos convencionais de coincidência ou anti-coincidência, apresentando resultados e incertezas compatíveis com estes dois métodos.

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

ABSOLUTE STANDARDIZATION OF POSITRON EMISSION RADIONUCLIDES
WITH GAMA SPECTROMETRY WITH THE SUM-PEAK METHOD

Estela Maria de Oliveira

March/2012

Advisors: Ricardo Tadeu Lopes

Akira Iwahara

Department: Nuclear Engineering

The method of measurement known as sum-peak was implemented in the National Metrology Laboratory of Ionizing Radiation for the absolute standardization of ^{18}F radioactive solution. The absolute standardization using a simple, fast and efficient method will allow the realization of quality control in routine applications of ^{18}F radiopharmaceutical in nuclear medicine services in Brazil. The procedure employed to standardize ^{18}F is presented. Measurements were also carried out using the same primary peak-sum counting system to measure other positron emitter radionuclides such as ^{22}Na , ^{65}Zn e ^{68}Ge , by means of two kinds of experimental setup. The validation and implementation was verified by comparing the activity concentration obtained in this method with those measured by a $4\pi(\text{CL})\text{-NaI(Tl)}$ anti-coincidence using an extended dead time, and the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method.

The results confirm that both the ^{18}F and other positron emitter radionuclides can be standardized by the sum-peak method. The absolute sum-peak method is presented as a viable alternative, since it provides activities in less time compared to conventional methods of anti-coincidence or coincidence within uncertainty limits.

ÍNDICE

RESUMO	vi
ABSTRACT	vii
1 INTRODUÇÃO	01
1.1 Revisão Bibliográfica	04
1.1.1 Método pico-soma	04
1.1.2 Padronização de ^{22}Na	06
1.1.3 Padronização de ^{18}F	06
1.1.4 Padronização de $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	07
1.1.5 Padronização de ^{65}Zn	07
2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS	09
2.1 Decaimento β^+	09
2.2 Métodos de Medição da Atividade de Radionuclídeos	09
2.2.1 O Método Pico-soma	11
2.2.2 O Método de Coincidência $4\pi\beta-\gamma$	15
2.2.3 O Método de Anti-coincidência	17
2.3 Incerteza	19
3 METODOLOGIA	21
3.1 Padronização do ^{22}Na	21
3.1.1 Características do ^{22}Na	22
3.1.2 Etapas de Padronização do ^{22}Na	22
3.2 Padronização do ^{18}F	23
3.2.1 Características do ^{18}F	23
3.2.2 Etapas de Padronização do ^{18}F	23

3.3	Padronização do ^{68}Ge	24
3.3.1	Características do ^{68}Ge e do ^{68}Ga	25
3.3.2	Etapas de Padronização do ^{68}Ge	25
3.4	Padronização do ^{65}Zn	26
3.4.1	Características do ^{65}Zn	27
3.4.2	Etapas de Padronização do ^{65}Zn	27
3.5	Correções Aplicadas	28
3.5.1	Decaimento Radioativo	28
3.5.2	Tempo Morto	28
3.5.3	Radiação de Fundo	29
3.5.4	Influência do fotopico de 1077 keV no pico-soma de 1022 keV do ^{68}Ga	29
3.6	Análise das Incertezas Aplicadas ao Método Pico-soma	30
3.6.1	Incertezas Tipo A (Estatísticas)	30
3.6.2	Incertezas Tipo B	32
3.6.2.1	Incerteza no Decaimento Radioativo	32
4	PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	33
4.1	Radionuclídeos Utilizados	33
4.2	Arranjos Experimentais	34
4.2.1	Arranjo Experimental 1	34
4.2.2	Arranjo Experimental 2	35
4.2.3	Arranjo Experimental 3	36
4.2.4	Os Ativímetros	37
4.2.4.1	Ativímetro CRC-15R	38
4.2.4.2	O Ativímetro FIDELIS (padrão secundário)	39
4.3	Confeção das Fontes	39
4.3.1	Para o Método Pico-soma	39
4.3.2	Para Medição nos Ativímetros	42

4.3.3	Para Medição no Sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$	42
4.3.4	Para Medição no Sistema de anti-coincidência	43
4.3.5	Para verificação de impurezas (ampola) e medições na câmara de ionização	44
4.4	Contagem da Radiação de Fundo	44
4.5	Contagem das Amostras	45
4.5.1	Medições do ^{22}Na	45
4.5.1.1	Medições do ^{22}Na no Arranjo Experimental 1	45
4.5.1.2	Medições do ^{22}Na no Arranjo Experimental 2	46
4.5.2	Medições do ^{18}F	47
4.5.2.1	Medições no Arranjo Experimental 1-Testes Preliminares	47
4.5.2.2	Medições no Arranjo Experimental 2	48
4.5.3	Medições do ^{65}Zn	49
4.5.3.1	Medições da Solução de ^{65}Zn com impurezas	50
4.5.3.2	Medições da Solução de ^{65}Zn livre de impurezas	51
4.5.4	Medições do $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$	51
4.6	Cálculo da Atividade	52
4.7	Impurezas	53
5	RESULTADOS E DISCUSSÕES	54
5.1	Padronização do ^{22}Na e Determinação do W para o Detector de NaI(Tl) 5x5 Poço	55
5.2	Padronização do ^{18}F	56
5.3	Padronização do ^{65}Zn	58
5.3.1	Solução de ^{65}Zn com impureza de ^{60}Co	58
5.3.2	Solução de ^{65}Zn isenta de impurezas	59
5.4	Padronização do $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	60

6 CONCLUSÕES 62

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS 65

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 3.1 Esquema de decaimento do ^{22}Na	21
Figura 3.2 Esquema de decaimento do ^{18}F	23
Figura 3.3 Esquema de decaimento do $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	25
Figura 3.4 Esquema de decaimento do ^{65}Zn	26
Figura 4.1 Arranjo experimental 1 com NaI(Tl) 5"X5" tipo poço	34
Figura 4.2 Esquema do arranjo experimental 2	35
Figura 4.3 Fotografia do arranjo experimental 2	35
Figura 4.4 Arranjo experimental 3 utilizado para o método pico-soma	36
Figura 4.5 Esquema do divisor de tensão utilizado no detector planar	37
Figura 4.6 Ativímetro CRC-15R em uso no LNMRI	38
Figura 4.7 Ativímetro padrão secundário em uso no LNMRI e tela principal do software Fidelis	39
Figura 4.8 Esquema de montagem das fontes para medição no método pico-soma	40
Figura 4.9 Fonte de ^{68}Ge em acrílico para o método pico-soma	40
Figura 4.10 Frascos de vidro usados para leitura nos Ativímetros	42
Figura 4.11 Esquema usado para preparar as fontes do sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$	43
Figura 4.12 Tipo de fonte preparada para o sistema de anti-coincidência	43
Figura 4.13 Espectro do ^{22}Na obtido no detector de NaI(Tl) poço	46
Figura 4.14 Espectro do ^{22}Na obtido no arranjo experimental 2	47
Figura 4.15 Espectro do ^{18}F obtido no detector de NaI(Tl) tipo poço	47
Figura 4.16 Espectro do ^{18}F obtido no arranjo experimental 2	49
Figura 4.17 Espectro do ^{65}Zn obtido no detector de HPGe planar	50
Figura 4.18 Espectro do ^{65}Zn obtido no detector de HPGe planar na solução sem impurezas	51
Espectro do $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ obtido no arranjo experimental 2	52

ÍNDICE DE SÍMBOLOS

BIPM	Bureau International des Poids et Mesures
CDTN	Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
CIEMAT	Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas
NIST	National Institute of Standards and Technology, EUA
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
CRCN-NE	Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste
EUROMET	European Collaboration in Measurement Standards
^{18}FDG	Fluordesoxiglicose
GMX	Detector semiconductor do tipo gama e X
HPGe	High-Purity Germanium detectors
IEN	Instituto de Engenharia Nuclear
IPEN	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
LNMRI	Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes
MTR2	Module de Temps-morts Reconductible
NPL	National Physical Laboratory, Inglaterra
PET	Positron Emission Tomography (Tomografia por Emissão de Pósitrons)
SIR	Sistema Internacional de Referência
TDCR	Triple-to Double Coincidence Ratio

INTRODUÇÃO

A medicina nuclear utiliza substâncias radioativas para diagnosticar e tratar doenças. Essa especialidade médica, capaz de fornecer informações fisiológicas e metabólicas sobre o corpo humano, se tornou uma ferramenta fundamental para a detecção precoce de muitas desordens, inclusive vários tipos de câncer.

A Tomografia por Emissão de Pósitrons (PET- Positron Emission Tomography) é uma das mais importantes técnicas de imagem existente atualmente e está em contínua expansão. A tomografia por emissão de pósitron produz imagens do organismo pela detecção da radiação emitida por substâncias radioativas, que são injetadas no corpo do paciente, sendo estas normalmente marcadas com um átomo radioativo, como carbono-11, flúor-18, oxigênio-15, ou nitrogênio-13, que têm um tempo de decaimento curto (meia-vida baixa). Estas substâncias são chamadas de radiofármacos. O radiofármaco mais usado neste tipo de exame é o ^{18}F Flúor-desoxiglicose (^{18}FDG).

Com o crescente uso da tomografia PET, cresce também a demanda por soluções de referência para calibração dos calibradores de radionuclídeos. O ^{22}Na e o ^{68}Ge são os padrões mais usados, pois são também emissores de pósitrons, assim como o ^{18}F .

Atualmente o ^{18}F é produzido no âmbito da CNEN, pelo IPEN em São Paulo, IEN no Rio de Janeiro, CRCN-NE em Recife e CDTN em Belo Horizonte.

É atribuição do Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes a conservação e a disseminação dos padrões radioativos em território Nacional.

O objetivo principal deste trabalho é a padronização do ^{18}F para disponibilização deste como solução de referência.

Na metrologia de radionuclídeos existe a necessidade de padronização de outros emissores de pósitrons que possuam meia-vida mais longa para calibração dos calibradores de radionuclídeos dos serviços de medicina nuclear. Os emissores de

pósitrons selecionados para serem medidos neste trabalho, além do ^{18}F , foram: ^{22}Na , ^{65}Zn e $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$.

Devido à meia-vida curta do ^{18}F ($1,8288 \pm 0,0003$) h [1], a metodologia selecionada para sua padronização deverá ser otimizada, para que se consiga ter Atividade suficiente até o término da padronização. Para esta padronização foi escolhido o método pico-soma usando um detector de NaI(Tl) poço, coberto com um detector de NaI(Tl) 3"X3", formando uma geometria aproximadamente 4π , pois este método além de ser um método Absoluto, apresenta-se como um método simples e prático, com incertezas associadas compatíveis com outros métodos absolutos de medição. O uso do detector tipo poço possibilita aumentar consideravelmente a eficiência total de detecção em relação ao sistema com o cristal de NaI(Tl) de face plana, por outro lado, com a medição da fonte no interior do poço, a faixa de medição fica restrita a valores baixos de Atividade [2].

O ^{68}Ge em equilíbrio com ^{68}Ga (núcleo-filho) se apresenta como uma solução potencial para substituição do ^{18}F na calibração dos calibradores de radionuclídeos, pois possui meia-vida relativamente longa ($270,95 \pm 0,16$) d [1] e apesar dos diversos gamas apresentados no esquema de decaimento do ^{68}Ga , só há um que acompanha o decaimento β^+ e este é de baixa intensidade, causando pouca interferência na medição. Para a padronização do $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ foi usado o mesmo arranjo experimental do ^{18}F .

O ^{22}Na também se apresenta como um padrão muito utilizado para calibração de calibradores de radionuclídeos, substituindo o ^{18}F , pois possui meia-vida longa ($2,6029 \pm 0,0008$) a [1]. Porém, possui um gama de 1274 keV bem intenso, que acompanha o β^+ interferindo mais nas medições do que o do ^{68}Ge . Conseqüentemente, há um interesse maior no uso do ^{68}Ge como padrão para substituir o ^{18}F do que o ^{22}Na .

A padronização do ^{22}Na teve como principal finalidade provar que o valor do fator de coincidência para os raios de aniquilação (W) em geometria aproximadamente 4π é

aproximadamente 1, podendo o método pico-soma ser aplicado para emissores β^+ puros, como um método absoluto e portanto sem necessidade do uso de padrões.

O interesse na padronização do ^{65}Zn ($T_{1/2} = 244,01 \pm 0,09$) d é devido a este radionuclídeo ser muito utilizado como fonte de calibração de espectrômetros X e γ . Geralmente as padronizações de soluções de ^{65}Zn são feitas usando o método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ [3], mas alguns autores têm relatado a dificuldade em realizar tais padronizações [4-7].

Devido à baixa intensidade do fotopico de 511 keV oriundo da aniquilação, o ^{65}Zn não pode ser padronizado utilizando o mesmo arranjo experimental citado para o ^{18}F , $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ e ^{22}Na . O Método pico-soma neste radionuclídeo foi realizado usando detector de HPGe planar, mostrando que este método constitui-se numa alternativa simples de padronização do ^{65}Zn .

Este trabalho foi dividido nas seguintes etapas:

1ª: padronização da solução de ^{22}Na e determinação do fator de coincidência para os raios de aniquilação (W) no detector NaI(Tl) Poço.

2ª: cálculo do fator de coincidência para os raios de aniquilação (W) para o arranjo experimental composto do detector de NaI(Tl) 5"x5" poço coberto com outro detector de NaI(Tl) 3"x3", formando a geometria aproximadamente 4π .

3ª: medição de ^{18}F neste arranjo experimental usando o método pico-soma e comparação com os métodos de coincidência e anti-coincidência.

4ª: medição do ^{68}Ge usando o mesmo arranjo experimental que para o ^{18}F , com o método pico-soma e comparação com os métodos de coincidência e anti-coincidência.

5ª: medição de ^{65}Zn no detector planar de HPGe, com o método pico-soma e comparação com valor obtido pela câmara de ionização, a qual teve seu fator de calibração para o ^{65}Zn determinado na comparação-chave BIPM.RI (II) - K2.Zn-65 de 2002.

1.1 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

1.1.1 Método pico-soma

O método pico-soma apresenta-se como uma alternativa simples para a padronização de radionuclídeos que possuam duas ou mais radiações eletromagnéticas. Essas duas radiações podem ser dois raios gama em coincidência, como é o exemplo do ^{60}Co e emissores β^+ , ou raio X seguido de um raio gama, como ^{65}Zn ou ^{51}Cr [8].

BRINKMAN e colaboradores [9] em 1963 deduziram a fórmula geral usada no método pico-soma. Dessa forma, mostraram que a atividade de um isótopo que emita dois raios gama em coincidência pode ser determinada por espectrometria gama, sendo calculada por uma relação entre as áreas dos dois fotopicos, a área do pico-soma e a extrapolação da contagem total do espectro para zero de energia (0 keV). Neste trabalho é mostrado que a mesma expressão pode ser usada para a determinação da atividade absoluta de emissores β^+ puros e emissores $\beta^+-\gamma$, mas apenas quando a geometria é aproximadamente 4π . O trabalho foi desenvolvido levando em conta que o detector usado no arranjo experimental era um cristal de iodeto de sódio do tipo poço.

No mesmo ano, 1963, BRINKMAN e ATEN [10] publicaram um trabalho relatando a calibração de emissores β^+ em um arranjo experimental de geometria aproximadamente 4π (cristal de iodeto de sódio tipo poço). Neste trabalho é definido W (fator de coincidência para os raios de aniquilação) e calculado seu valor com uma fonte de ^{60}Co calibrada. O valor de W é calculado com a fonte posicionada no fundo do poço, e no centro do poço. O valor no fundo do poço é $W = 0,981 \pm 0,009$ e no centro do poço $W = 0,428 \pm 0,037$.

HUTCHINSON et al. [11], trabalharam com o método pico-soma usando dois cristais de iodeto de sódio do tipo poço, formando uma geometria 4π .

BRINKMAN et al., em 1977 [12] voltaram a publicar um artigo aplicando o método pico-soma, porém o radionuclídeo estudado foi o ^{123}I . Foram realizadas medições com uma fonte sólida puntiforme dentro de um frasco de vidro posicionado no fundo do poço e uma solução de 5 ml em um frasco de vidro posicionado no fundo do poço. A conclusão foi que o método pico-soma também pode ser usado para soluções e não somente para fontes puntiformes. Uma correção foi feita para a impureza encontrada de ^{125}I .

Vários autores apresentaram trabalhos fazendo uso do método pico-soma, tais como:

- DIAS e KOSKINAS em 1995 [13], na determinação da atividade do ^{125}I , descrevendo a correção aplicada para somas acidentais;
- WANG et al. em 2001 [14], para determinar atividade do ^{125}I usando um detector de HPGe do tipo poço;
- KIM et al. em 2003 [15], para calibração absoluta de ^{60}Co usando um HPGe;
- CAPOGNI et al. em 2006 [16], na determinação da atividade absoluta de ^{125}I usando dois detectores diferentes de iodeto de sódio, descrevendo correções para somas randômicas e empilhamento de pulsos;
- DA SILVA et al. em 2006 [17], na determinação da atividade do ^{125}I usando dois detectores de iodeto de sódio diferentes, e comparando com um HPGe;
- ALMEIDA et al. em 2007 [8] para determinação da atividade do ^{51}Cr usando um detector planar de germânio;
- VIDMAR et al. em 2009 [18], na padronização de fontes extensas de ^{60}Co ;
- NOVKOVIC et al. em 2011 [19], na determinação da atividade de ^{133}Ba usando dois detectores de HPGe.

1.1.2 Padronização de ^{22}Na

NAHLE et al. em 2008 [20] publicaram um trabalho em que a atividade de uma solução de ^{22}Na foi determinada pelo método $4\pi\beta-\gamma$ e o valor foi comparado com valores encontrados na câmara de ionização e no método CIEMAT/NIST (cintilação em meio líquido).

DIAS et al. em 2010 [21] usaram simulação por Monte Carlo para prever o comportamento das curvas de extrapolação obtidas na padronização de radionuclídeos pelo método $4\pi\beta-\gamma$.

IWAHARA et al. em 2010 [22] apresentaram um trabalho em que o ^{22}Na é padronizado pelo método $4\pi\beta-\gamma$ e pelo método pico-soma.

1.1.3 Padronização de ^{18}F

ZIMMERMAN et al. em 2001 [23] realizaram experimentos com uma solução de ^{18}F em três geometrias diferentes (ampola, seringa de 12 ml e frasco hospitalar), em calibradores de dose do tipo CRC-12 e CRC-35R. A solução foi produzida no NIH e padronizada no NIST usando o método $4\pi\beta$ cintilação líquida.

ROTETA e colaboradores em 2006 [24] padronizaram uma solução de ^{18}F pelo método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ e cintilação em meio líquido.

SCHRADER et al. em 2007 [25] descreveram a padronização de soluções de ^{18}F usando contagem em coincidência $4\pi\beta-\gamma$ e cintilação em meio líquido com o Método CIEMAT/NIST.

YAMADA et al. em 2008 [26] realizaram a padronização de uma solução de ^{18}F aplicando a técnica de contagem integral $4\pi(\beta+\gamma)$. Nesta técnica o detector beta é composto de dois cintiladores plásticos finos, "sanduichando" a fonte.

CESSNA et al. em 2008 [27] estudaram a calibração de ativímetros usando uma solução ^{18}F em geometria de seringa de 3 ml. O propósito do trabalho era avaliar a calibração destes equipamentos usando a solução na mesma geometria que a usada

para injetar o radiofármaco no paciente. A atividade da solução original foi determinada pelo método CIEMAT/NIST.

BACCARELLI e colaboradores em 2008 [28] descreveram o procedimento desenvolvido para a padronização de uma solução de ^{18}F aplicando o método de coincidência com detector cintilador plástico em geometria 4π chamado $4\pi(\text{PS})\beta-\gamma$.

NEDJADI et al. em 2010 [29] padronizaram uma solução de ^{18}F com sistema de coincidência $4\pi\beta-4\pi\gamma$, no qual o detector beta é um cintilador plástico posicionado no fundo de um detector de NaI(Tl) tipo poço.

1.1.4 Padronização de $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$

GRIGORESCU et al., em 2004 [30] padronizaram uma solução de $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ usando o método $4\pi\beta-\gamma$ e chamaram a atenção para a perda por volatilização do ^{68}Ge na etapa de preparação das fontes sólidas. De acordo com os autores deve-se ter cuidado ao preparar as fontes sólidas para evitar ou para considerar a perda por volatilização.

ZIMMERMAN et al. em 2008 [31] padronizaram uma solução de $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ usando três métodos diferentes de cintilação em meio líquido, para assim evitar a perda por volatilização no processo de secagem da fonte citada por GRIGORESCU et al. [30]. Os métodos usados foram: anti-coincidência $4\pi\beta-\gamma$, TDCR e CIEMAT/NIST.

ZIMMERMAN e CESSNA em 2010 [32] desenvolveram uma metodologia para usar fontes de $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ como padrões substitutos do ^{18}F na calibração dos ativímetros. Os padrões de ^{18}F e $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ foram feitos em seringa tendo como base resina de epóxi.

1.1.5 Padronização de ^{65}Zn

Em 1998, GUNTHER [33] determinou a atividade de uma solução de ^{65}Zn utilizando o método de cintilação em meio líquido CIEMAT/NIST, onde o valor foi

comparado com o resultado de uma câmara de ionização cujo fator estava rastreado ao SIR – Sistema Internacional de Referência.

SAHAGIA et al., em 2004 [04] padronizaram uma solução de ^{65}Zn utilizando o método de contagem em coincidência revisando aspectos teóricos, tais como: equações de coincidência, equações de eficiência e condições de linearidade.

Em 2002 o BIPM organizou uma comparação-chave para o ^{65}Zn , e três autores lançaram em anos seguintes seus resultados. São eles:

- KARMALITSYN et al. em 2004 [05] apresentaram seus valores de atividade em dois métodos: coincidência $4\pi\text{PC-}\gamma$ com extrapolação da eficiência e coincidência $\text{KX-}\gamma$ usando dois cristais de NaI(Tl) de diferentes espessuras.

- IWAHARA et al. em 2005 [06] publicaram seu valor obtido na comparação-chave, utilizando o método de contagem em coincidência $4\pi\text{PC-}\gamma$.

– HAVELKA et al. em 2006 [07] relataram o valor obtido para o ^{65}Zn usando também o método em coincidência $4\pi\text{PC-}\gamma$.

Em 2006, BÉ [3] apresentou o resultado do “International EUROMET exercise Action 721”, o qual foi projetado para estudar e medir as intensidades das emissões gama do ^{65}Zn , com o objetivo de melhorar a exatidão dos dados do esquema de decaimento deste radionuclídeo.

No mesmo ano, 2006, KOSSERT et al. [34] também publicaram seus resultados referentes ao “International EUROMET exercise Action 721”. Além da padronização do ^{65}Zn pelo método de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$, e por cintilação em meio líquido, foram determinadas as probabilidades de emissão para 1115 keV, 511 keV, 344 keV e 770 keV.

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 O DECAIMENTO β^+

É um tipo de decaimento beta onde um núcleo com deficiência de nêutrons pode chegar ao equilíbrio de sua razão número de nêutrons por número atômico por meio do decaimento por emissão de pósitrons. No decaimento β^+ , um próton é convertido em nêutron, liberando um pósitron e um neutrino, de acordo com a Equação 2.1.



No decaimento por emissão de pósitrons o número atômico (Z) reduz de uma unidade, e o número de massa (A) não se altera.

A emissão β^+ é sempre acompanhada por radiação de aniquilação. Os pósitrons sofrem interação com elétrons negativos (muito abundantes) produzindo dois fótons gama de 511 keV emitidos diametralmente opostos [35]. Os fótons resultantes da aniquilação do pósitron possuem uma correlação angular entre si resultante da conservação do momento linear. Se a aniquilação se efetuasse com o pósitron e elétron em repouso, os dois fótons seriam emitidos com um ângulo relativo entre si de 180° . Na emissão do pósitron pode ocorrer a emissão de um ou mais fótons gama, pois o átomo filho pode ser gerado no estado fundamental ou excitado.

2.2 MÉTODOS DE MEDIÇÃO DA ATIVIDADE DE RADIONUCLÍDEOS

Para determinação da atividade dos radionuclídeos, os métodos de medição são classificados em dois tipos: métodos diretos ou absolutos e métodos indiretos ou relativos.

Os métodos absolutos são também chamados de métodos diretos, pois a atividade é determinada sem o emprego de um padrão. A determinação da atividade da fonte é feita por meio de contagens observadas. Os padrões obtidos por esses

métodos são chamados de padrões absolutos ou primários. Para a padronização absoluta de uma fonte radioativa, os métodos mais utilizados são:

- contagem em coincidência pico-soma
- coincidência $4\pi\beta-\gamma$
- anti-coincidência
- contagem 4π
- contagem em ângulo sólido definido

Dentre os métodos absolutos citados acima o mais utilizado é o de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, pois este permite a obtenção de resultados altamente precisos e é aplicável a todos os radionuclídeos que decaem pela emissão de duas ou mais radiações em coincidência.

Os métodos relativos são também chamados de indiretos, devido à necessidade de fontes de referência para comparação (padrões) e de se conhecer a eficiência dos detectores. Para determinação das eficiências dos detectores são usados padrões radioativos rastreados aos sistemas absolutos de medição [36]. Os métodos relativos mais utilizados são:

- espectrometria gama com detector de germânio
- espectrometria gama com detector de NaI(Tl)
- câmara de ionização tipo poço
- detector proporcional 2π
- espectrometria alfa com detector de barreira de superfície

Os métodos relativos mais utilizados são os que utilizam detectores de NaI(Tl) e germânio puro (GMX), por serem métodos rápidos, versáteis em relação à geometria da amostra e por apresentarem exatidão satisfatória. Apesar do detector NaI(Tl) ser eficiente e sensível para amostras de baixa atividade, se houver a necessidade de identificação do radionuclídeo, o detector mais indicado é o de germânio, devido à sua ótima resolução.

2.2.1 O Método Pico-soma

O método pico-soma é uma técnica de medição absoluta que usa contagem em coincidência na espectrometria gama. A contagem em coincidência é um método absoluto composto por dois detectores que registram as radiações $\beta\text{-}\gamma$; $\gamma\text{-}\gamma$ e $X\text{-}\gamma$ que forem coincidentes, usando a coincidência ou anti-coincidência entre os sinais dos detectores. O método pico-soma é baseado no mesmo princípio da contagem em coincidência, porém usando apenas um detector de radiação gama, ou em alguns casos, dois detectores gama, quando for necessária a geometria de contagem 4π .

Para que possa ser aplicado o método pico-soma, o radionuclídeo a ser medido deverá emitir ao menos dois fótons simultâneos. Esse método foi proposto inicialmente por Brinkman e colaboradores [9], que neste seu primeiro trabalho com o método pico-soma, afirma que a Atividade de um isótopo que emita dois raios gama em coincidência pode ser obtida a partir das áreas sob os dois fotopicos, a área do pico-soma e uma extrapolação da contagem para energia zero. Este método tem sido aplicado usando-se um cristal de NaI(Tl) tipo poço planar, ou dois cristais dispostos de maneira a formar uma geometria de aproximadamente 4π .

Considerando um radionuclídeo que emita um fóton γ_1 em coincidência com um fóton γ_2 , as áreas sob os fotopicos correspondentes ao γ_1 e γ_2 e ao pico-soma $\gamma_1 + \gamma_2$ são dadas por:

$$A_1 = N.e_1.(1-t_2) \quad (2.2)$$

$$A_2 = N.e_2.(1-t_1) \quad (2.3)$$

$$A_{12} = N.e_1.e_2 \quad (2.4)$$

Em que: A_1 e A_2 áreas sob os fotopicos de um isótopo que emita dois raios gama em coincidência
 A_{12} área sob o pico-soma
 N Atividade Absoluta da fonte
 e_1 e e_2 eficiência do fotopico para γ_1 e γ_2

t_1 e t_2 eficiências totais de detecção para γ_1 e γ_2

Combinando as equações (2.2), (2.3) e (2.4), obtemos:

$$A_1.A_2 = N.e_1.(1-t_2).N.e_2.(1-t_1) \quad (2.5)$$

$$A_1.A_2 = N.e_1.e_2.N(1-t_2)(1-t_1) \quad (2.6)$$

$$\boxed{\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N(1-t_2)(1-t_1)} \quad (2.7)$$

O produto $(1 - t_1) (1 - t_2)$ representa a probabilidade de não detecção de γ_1 e γ_2 , então, a probabilidade de detecção será $[1-(1 - t_1) (1 - t_2)]$.

A área total sob todo o espectro (T) será:

$$T = N\{1 - [(1-t_1)(1-t_2)]\} \quad (2.8)$$

$$T = N[1 - (1-t_2 - t_1 + t_1t_2)] \quad (2.9)$$

$$T = N[1 - 1 + t_2 + t_1 - t_1t_2] \quad (2.10)$$

$$\boxed{T = N(t_2 + t_1 - t_1t_2)} \quad (2.11)$$

Das equações 2.7 e 2.11, obtemos:

$$\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N(1-t_1-t_2+t_1t_2) \quad (2.12)$$

$$\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N[1 - (t_1 + t_2 - t_1t_2)] \quad (2.13)$$

$$\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N\left(1 - \frac{T}{N}\right) \quad (2.14)$$

$$\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N\left(\frac{N-T}{N}\right) \quad (2.15)$$

$$\frac{A_1.A_2}{A_{12}} = N - T \quad (2.16)$$

$$\boxed{\frac{A_1.A_2}{A_{12}} + T = N} \quad (2.17)$$

A equação 2.17 constitui a equação geral do método pico-soma e é usada para determinar a atividade absoluta de radionuclídeos que possuam pelo menos dois gamas em coincidência em seu esquema de decaimento. Esta mesma equação pode ser usada para a padronização de emissores β^+ puros ou $\beta^+-\gamma$, desde que a geometria de medição seja aproximadamente 4π .

No caso dos emissores β^+ puros, o pico-soma não ocorrerá se o ângulo sólido do cristal de NaI ou germânio for menor que 2π , então o método não pode ser aplicado. Para esse tipo de emissor (β^+ puro) o método é possível somente com a fonte posicionada dentro de um cristal do tipo poço, pois sendo assim o ângulo sólido não difere muito da geometria 4π . Esta restrição é devida à correlação angular entre os raios de aniquilação ser extremamente forte, ou seja, como os dois fótons gama de 511 keV resultantes da aniquilação são diametralmente opostos, somente uma parte dos fótons será detectada, não sendo detectado o fóton coincidente. Desta forma, não ocorre a soma.

Para o caso dos emissores β^+ puros, as equações ficam então definidas da seguinte forma [9]:

$$A_1 = A_2 = Ne_1(1 - Wt_1) \quad (2.18)$$

$$A_{12} = Ne_1^2 W \quad (2.19)$$

Como se trata do mesmo gama, 511 keV, $t_1=t_2$, então, pela equação 2.11,

$$T = N(2t_1 - Wt_1^2) \quad (2.20)$$

$$\left(\frac{A_1^2}{A_{12}} + T\right) = \frac{N}{W} \quad (2.21)$$

Em que: $A_1 = A_2$ área sob o pico de aniquilação (511 keV)
 A_{12} área do fotopico devido à contagem de dois raios de aniquilação em coincidência (pico-soma = 1022 keV)
 T taxa de contagem total – área sob todo o espectro

W é um fator de coincidência (fator de correlação) que leva em conta a influência da geometria na taxa de contagem em coincidência. Indica a razão da probabilidade do segundo raio de aniquilação ser detectado se o primeiro também for.

A consideração a ser feita em relação à W é que o valor deste deve ser o mesmo em outras somas-coincidências que existam ao longo do espectro [9].

Não é possível determinar W diretamente do espectro, usando somente o pico de coincidência. Somente no caso de W ser conhecido é que se pode determinar N . Entretanto existe um modo de determinar o valor de W das medições de um radionuclídeo. Basta ser um radionuclídeo que emita radiação de aniquilação e também radiação γ . Um exemplo é o ^{22}Na , que possui em seu esquema de decaimento os raios de aniquilação e um gama em torno de 1274 keV.

Se uma fonte de ^{22}Na for posicionada no fundo de um detector do tipo poço, três somas serão visualizadas no espectro e terão as seguintes equações associadas:

- 1) soma do 511 keV com o 1274 keV, formando o 1785 keV

$$\left(\frac{A_{511}A_{1274}}{A_{1785}} + T\right) = N_1 \quad (2.22)$$

- 2) soma do 1022 keV com o 1274 keV formando o 2296 keV.

$$\left(\frac{A_{1022}A_{1274}}{A_{2296}} + T\right) = N_2 \quad (2.23)$$

- 3) soma dos dois fótons de 511 keV, formando o pico de 1022 keV

$$\left(\frac{A_{511}^2}{A_{1022}} + T\right).W = N_3 \quad (2.24)$$

Como a atividade tem que ser a mesma para as três equações acima, pode-se obter o valor de W de duas maneiras: pelo valor de N_1 e pelo valor de N_2 .

$$N_1 = N_2 = N_3 \quad (2.25)$$

Logo,

$$W = N_1 / \left(\frac{A_{511}^2}{A_{1022}} + T \right) = N_2 / \left(\frac{A_{511}^2}{A_{1022}} + T \right) \quad (2.26)$$

2.2.2 O Método de Coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

Apesar da técnica de coincidência datar de 1910, somente em 1924 é que ela foi aplicada na determinação da atividade absoluta. A padronização por este método baseia-se no uso de dois detectores, um para cada tipo de radiação emitida, e um módulo para detecção dos eventos coincidentes, detectados ao mesmo tempo nesses dois detectores [36, 37].

Supondo-se um radionuclídeo com um esquema de decaimento simples que ocorre pela emissão de uma partícula β seguida de radiação gama, as taxas de contagem registradas no canal β , N_β , do canal gama, N_γ e do canal de coincidência N_C , serão funções das eficiências de detecção ε_β , ε_γ e ε_C , respectivamente. Sendo as eficiências ε_β e ε_γ independentes, ε_C é igual ao produto $\varepsilon_\beta\varepsilon_\gamma$ [37].

Se a atividade por unidade de massa da fonte for N_0 , então:

$$N_\beta = \varepsilon_\beta N_0 \quad (2.27)$$

$$N_\gamma = \varepsilon_\gamma N_0 \quad (2.28)$$

$$N_C = \varepsilon_\gamma \varepsilon_\beta N_0 \quad (2.29)$$

Multiplicando-se N_β por N_γ e dividindo por N_C , tem-se:

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} = \frac{(N_0 \varepsilon_\beta)(N_0 \varepsilon_\gamma)}{N_0 \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma} \quad (2.30)$$

$$N_0 = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_C} \quad (2.31)$$

Verifica-se então que se pode conhecer a atividade por unidade de massa, N_0 , sem introduzir as eficiências dos detectores beta e gama, para as energias consideradas. Porém esta equação (2.31) só pode ser aplicada a radionuclídeos que possuam esquema de decaimento simples, como o ^{60}Co .

As correções principais são para a radiação de fundo, a perda de contagem devido ao tempo morto em cada um dos canais e para as coincidências acidentais devido a tempo de resolução finito no canal de coincidência [38].

A maioria dos radionuclídeos beta emissores possuem um esquema de decaimento mais complexo, envolvendo emissão imediata de raios gama, elétrons de conversão, raios X e elétrons Auger. Como o detector beta é muito sensível a essas radiações, as equações de coincidência devem ser modificadas.

Aplicando o método de extrapolação linear da eficiência, determina-se a taxa de decaimento de um radionuclídeo com esquema de decaimento complexo, sem o conhecimento prévio dos seus parâmetros e das eficiências de detecção, sendo N_0 obtido pela extrapolação da eficiência para o valor 1 [37, 38].

Sendo α o coeficiente de conversão interna total, ε_{ec} e $\varepsilon_{\beta\gamma}$ as eficiências do detector beta, respectivamente para elétrons de conversão interna e para radiação gama, então, a equação (2.31) pode ser reescrita como:

$$N_{\beta} = N_0 \left[\varepsilon_{\beta} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \left(\frac{\alpha \cdot \varepsilon_{ec} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.32)$$

$$N_{\gamma} = \frac{N_0 \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \quad (2.33)$$

$$N_c = N_0 \left[\frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_{\beta}) \varepsilon_c \right] \quad (2.34)$$

Num contador proporcional $4\pi\beta$ de alta eficiência, o termo $(1-\varepsilon_{\beta})$ tende a zero quando ε_{β} tende a 1 [38]. Então:

$$\frac{N_c}{N_{\gamma}} = N_0 \left(\frac{\varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma}}{1 + \alpha} \right) \left(\frac{1 + \alpha}{N_0 \varepsilon_{\gamma}} \right) \quad (2.35)$$

$$\frac{N_c}{N_{\gamma}} = \varepsilon_{\beta} \quad (2.36)$$

Combinando as equações (2.32), (2.33) e (2.34), chega-se à equação de coincidência generalizada, em que K_ε é a constante da correção para o esquema de decaimento.

$$\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} = N_0 \left[1 + K_\varepsilon \left(\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \right) \right] \quad (2.37)$$

2.2.3 O Método de Anti-coincidência

O método de anti-coincidência surgiu como uma alternativa ao método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, o qual é um método muito bem estabelecido. O método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ apresenta certas limitações, tais como: dificuldades na correção de tempo morto no uso de altas taxas de contagem e ser contra indicado para o uso com emissores que decaem pela emissão de estados meta-estáveis ou isoméricos [38].

Para se eliminar os problemas relacionados à correção de tempo morto, tempo de resolução e para trabalhar com estados nucleares meta-estáveis, utiliza-se a cronometragem em tempo vivo associado à contagem em anti-coincidência.

Na contagem em anti-coincidência são contados os raios gamas que não estão associados às emissões do tipo beta. A taxa de contagem no canal de coincidência é obtida por subtração da contagem gama total da taxa de contagem não correlacionada. Nos radionuclídeos com decaimento beta-gama pronto ($<10^{-10}$ s), somente serão aceitos como eventos em anti-coincidência os sinais oriundos de eventos gama que sejam detectados antes ou depois dos sinais beta num intervalo de tempo maior que 10^{-10} s. A contagem em coincidência é reservada para radionuclídeos que decaem prontamente, pois a meia-vida do estado excitado é menor que o tempo de resolução do circuito de coincidência.

No sistema de anti-coincidência, as contagens nos canais gama, beta e anti-coincidência, respectivamente N_γ , N_β e N_{anc} , são representadas pelas equações: [38]

$$N_{\beta} = N_0 \sum_r a_r \left[\varepsilon_{\beta r} + (1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta \gamma}}{1 + \alpha} \right)_r \right] \quad (2.38)$$

$$N_{\gamma} = N_0 \sum_r a_r \frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \quad (2.39)$$

$$N_{anc} = N_0 \sum_r a_r \left[(1 - \varepsilon_{\beta r}) \left(\frac{\varepsilon_{\gamma r}}{1 + \alpha_r} \right) \right] \quad (2.40)$$

Em que: N_0 é a atividade da fonte; N_{γ} , N_{β} e N_{anc} são as taxas de contagem nos canais γ , β e anti-coincidência, corrigidas 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 ao ramo β ; $\alpha_{\beta \gamma r}$ 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 .

Como:
$$N_{anc} = N_{\gamma} - N_c, \quad (2.41)$$

Então:
$$N_c = A \varepsilon_{\beta} \varepsilon_{\gamma} \quad (2.42)$$

e:
$$N_0 = \frac{N_{\beta} N_{\gamma}}{N_c} \quad (2.43)$$

No Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes o método de anti-coincidência foi implementado por DA SILVA, em 2006 [38], e as medições têm sido realizadas usando a cintilação em meio líquido no canal beta e detector de NaI(Tl) no canal gama. Em ambos os canais beta e gama são usados os módulos MTR2 [38]. Os módulos MTR2 permitem operar com valores de tempo morto de 25 a 200 μ s.

2.3 INCERTEZA

A incerteza de medição expressa o grau de confiabilidade de um resultado, visto que pode ser definida como uma faixa onde se supõe estar o valor verdadeiro, com um determinado nível de probabilidade. Experimentalmente pode ter origem em diversas fontes, tais como, amostragem, condições ambientais, determinação de massa e volume, valores de referência, etc. Cada fonte de incerteza deve ser tratada separadamente e elas são agrupadas em duas categorias, Tipo A e Tipo B, dependendo da maneira como seu valor numérico foi obtido [39].

A incerteza do tipo A é estimada a partir de uma série de observações repetidas, baseando-se na distribuição estatística dos resultados. Os estimadores das incertezas tipo A são definidos pelo desvio padrão experimental e pelo desvio padrão experimental da média.

$$S(x) = \sqrt{\frac{\sum (\bar{x} - x_i)^2}{n-1}} \quad (2.44)$$

$$S(\bar{x}) = \frac{S(x)}{n-1} \quad (2.45)$$

A incerteza do tipo B é obtida por julgamento científico ou por meio de informações sob a variação dos parâmetros de medição.

A incerteza padrão combinada (U_c) caracteriza a dispersão dos valores medidos. Para calculá-la, utiliza-se a regra de combinação de variâncias partindo-se das incertezas padrões de combinação de cada componente do tipo A e do tipo B. A incerteza padrão combinada é muito usada para expressar a incerteza de um resultado de medição, mas muitas vezes é necessário definir um intervalo no qual o valor verdadeiro se situa. Esse intervalo é chamado de intervalo de confiança e a incerteza, de incerteza expandida (U), a qual é calculada multiplicando-se a incerteza padrão combinada por um fator de abrangência k .

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad (2.46)$$

$$U = \pm k u_c(y) \quad (2.47)$$

O objetivo deste trabalho é padronizar alguns radionuclídeos emissores de pósitrons pelo método pico-soma, tendo como alvo principal a padronização do ^{18}F . Para alcançar esta meta o trabalho foi praticamente dividido em duas etapas:

- medição de ^{22}Na e ^{18}F no iodeto de NaI(Tl) tipo poço 5"X5"
- montagem do arranjo experimental com geometria aproximadamente 4π para medição do radionuclídeos emissores β^+ puros (^{18}F e $^{68}\text{Ge+Ga}$)

Na aplicação do método pico-soma para padronização dos emissores de pósitrons, o procedimento experimental a ser usado depende do esquema de decaimento de cada radionuclídeo.

3.1 PADRONIZAÇÃO DO ^{22}Na

De acordo com o esquema de decaimento do ^{22}Na mostrado na Figura 3.1 [1], verifica-se que há um gama de 511 keV proveniente da aniquilação e um gama de 1274 keV.

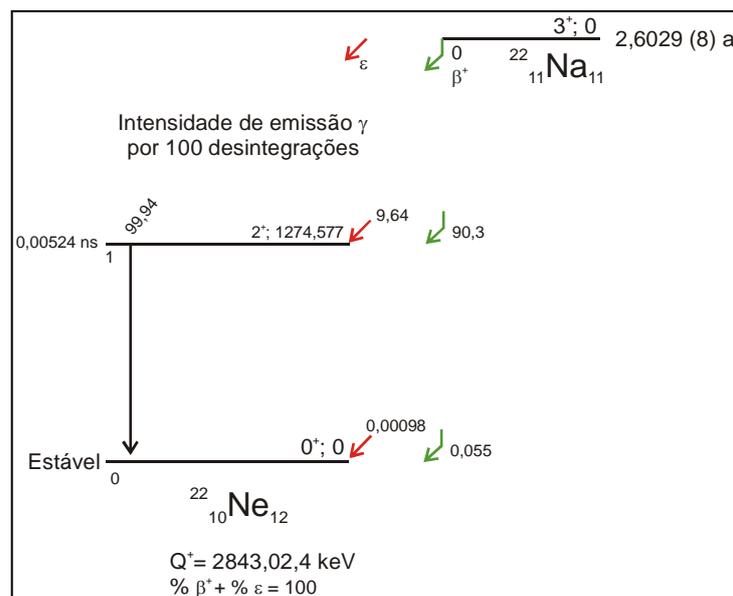


Figura 3.1 Esquema de decaimento do ^{22}Na .

3.1.1 Características do ^{22}Na

O ^{22}Na possui meia-vida de $(2,6029 \pm 0,0008)$ a e decai predominantemente para o nível de 1275 keV do ^{22}Ne . Uma pequena fração (0,056 %) decai para o ^{22}Ne estável. A emissão gama de 511 keV apresenta probabilidade de emissão de $(180,7 \pm 0,2)$ fótons por 100 decaimentos [1].

3.1.2 Etapas de padronização do ^{22}Na

A padronização do ^{22}Na seguiu de acordo com as etapas:

- Etapa 1

Medição em dois sistemas: espectrometria gama com detector de germânio coaxial e sistema de espectrometria gama com detector de NaI(Tl) tipo poço 5"x5" usando em ambos os sistemas o método pico-soma

Finalidade : padronização do ^{22}Na e determinação do fator de coincidência para os raios de aniquilação W no iodeto poço antes da montagem da geometria 4π .

- Etapa 2

Montagem do sistema de espectrometria gama com detector NaI(Tl) 5"x5" poço coberto com outro detector de NaI(Tl) 3"x3", formando então a geometria 4π .

Finalidade : padronização do ^{22}Na e comprovação de que na geometria 4π o fator de coincidência para os raios de aniquilação W é igual a 1. Desta maneira o método pico-soma usando o detector de NaI(Tl) tipo poço com geometria 4π , o método apresenta-se como um método absoluto para emissores β^+ puros.

- Etapa 3

Avaliação das incertezas associadas às medições de Atividade bem como à determinação do fator W.

Finalidade: mostrar que mesmo sendo um método mais fácil e prático que os outros métodos absolutos, o Método pico-soma apresenta incertezas compatíveis ou melhores que os outros métodos absolutos tradicionais.

3.2 PADRONIZAÇÃO DO ^{18}F

O esquema de decaimento do ^{18}F é bem simples, como mostrado na Figura 3.2. Como é um emissor β^+ puro, apresenta apenas um gama de 511 keV, com probabilidade de emissão gama de $(193,72 \pm 0,27)$ fótons por 100 decaimentos [1].

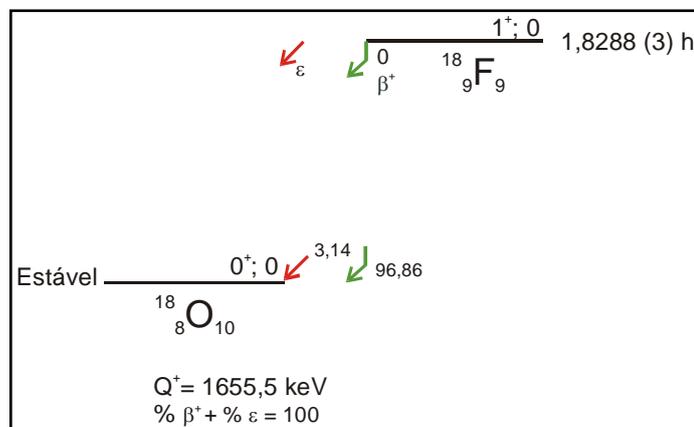


Figura 3.2 Esquema de decaimento do ^{18}F .

3.2.1 Características do ^{18}F

O ^{18}F possui meia vida de $(1,8288 \pm 0,0003)$ h, e decai por emissão β^+ com 96,86(19) % de probabilidade e por captura eletrônica com 3,14(19) % de probabilidade para o nível fundamental do ^{18}O . A máxima energia β^+ é 633,5 (6) keV [1].

3.2.2 Etapas de padronização do ^{18}F

- Etapa 1

Medição no sistema de espectrometria gama com detector de NaI(Tl) tipo poço 5"x5" usando o método pico-soma, aplicando o valor de W calculado pela medição do ^{22}Na ,

comparando os valores com o sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e o Anti-coincidência (métodos absolutos já consagrados).

Finalidade : verificar se o método é viável antes da montagem da geometria de medição 4π .

- Etapa 2

Medição no sistema de espectrometria gama com detector de NaI(Tl) tipo poço 5"x5" coberto com o detector de NaI(Tl) 3"x3", formando então a geometria 4π .

Finalidade: padronização do ^{18}F e comparação com resultados dos outros métodos (Coincidência e Anti-coincidência).

- Etapa 3

Avaliação das incertezas associadas às medições de Atividade e determinação das correções necessárias.

Finalidade: apresentar o valor de incerteza obtido pelo sistema.

3.3 PADRONIZAÇÃO DO ^{68}Ge

Na Figura 3.3 é mostrado um esquema simplificado de decaimento do ^{68}Ge e seu núcleo filho ^{68}Ga [31], onde pode-se verificar a existência de um gama de 511 keV proveniente da aniquilação e um gama de 1077 keV. A probabilidade de emissão gama do fóton de 511 keV do ^{68}Ga é de $(178,28 \pm 0,22)$ fótons por 100 decaimentos [1].

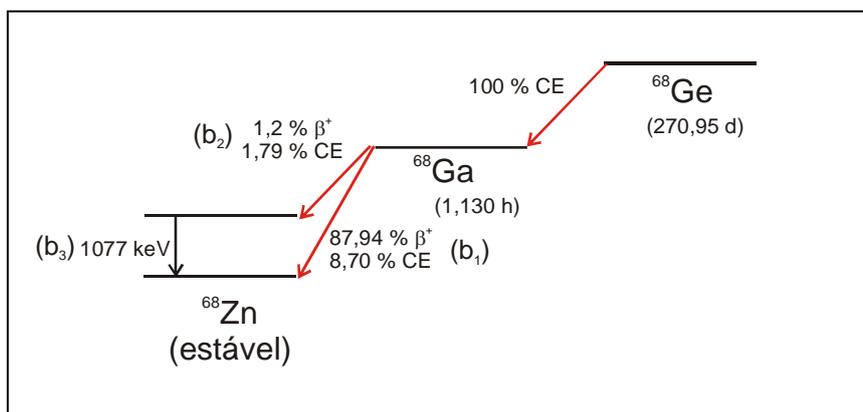


Figura 3.3 Esquema de decaimento do ^{68}Ge ($\text{Ge} + \text{Ga}$).

3.3.1 Características do ^{68}Ge e do ^{68}Ga

O ^{68}Ge possui meia-vida de $(270,95 \pm 0,16)$ d e decai 100% via captura eletrônica para o ^{68}Ga [1], produzindo raios X e elétrons Auger com energias menores que 10 keV [30].

O ^{68}Ga decai por emissão de pósitrons (89,14 %) e captura eletrônica (10,86 %) para o ^{68}Zn . Possui meia-vida de $(1,1285 \pm 0,0010)$ h [1].

A metodologia adotada consiste em medir a Atividade do ^{68}Ga e, por estarem estes dois radionuclídeos (^{68}Ge e ^{68}Ga) em equilíbrio radioativo, a Atividade é a mesma para ambos [30].

Embora o ^{68}Ge apresente um esquema de decaimento mais simples (somente captura eletrônica), a determinação da Atividade deste radionuclídeo é facilitada pela presença do gama de 511 keV do ^{68}Ga .

3.3.2 Etapas de padronização do ^{68}Ge

- Etapa 1

Medição no sistema de espectrometria gama com detector de NaI(Tl) tipo poço 5"x5" coberto com o detector de NaI(Tl) 3"x3" (geometria 4π).

Finalidade: padronização do ^{68}Ge por pico-soma e comparação com resultados de outros métodos (Coincidência e Anti-coincidência).

- Etapa 2

Avaliação das incertezas associadas às medições de Atividade e determinação das correções necessárias.

Finalidade: apresentar o valor de incerteza obtido pelo sistema.

3.4 PADRONIZAÇÃO DO ^{65}Zn

No esquema de decaimento do ^{65}Zn mostrado na Figura 3.4 [1], observa-se que há um gama de 1115 keV. Este gama é coincidente com um raio X de 8 keV oriundo da captura eletrônica.

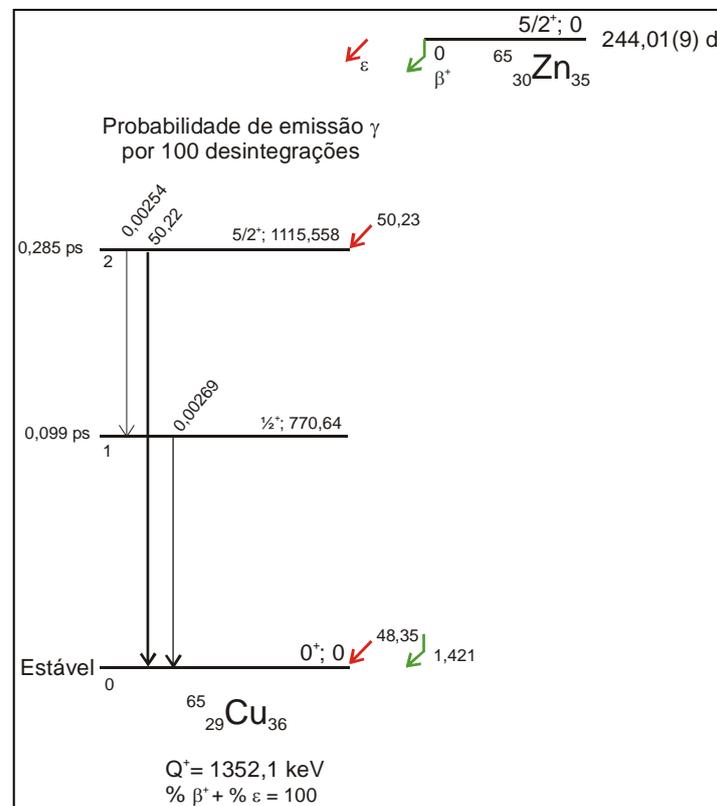


Figura 3.4 Esquema de decaimento do ^{65}Zn .

3.4.1 Características do ^{65}Zn

O ^{65}Zn possui meia-vida de $(244,01 \pm 0,09)$ d e decai por captura eletrônica para o nível excitado de 1115 keV e por captura eletrônica e também por emissão β^+ para o estado fundamental do ^{65}Cu [1].

Apesar de apresentar um gama de 511 keV proveniente da aniquilação, este é de baixíssima intensidade $(2,842 \pm 0,013)$ fótons por 100 decaimentos [1]). Logo, com pouca probabilidade de formar o pico-soma em 1022 keV. Desta forma, a metodologia escolhida utiliza-se da coincidência do raio X de 8 keV com o gama de 1115 keV para formar o 1123 keV (pico-soma).

3.4.2 Etapas de padronização do ^{65}Zn

- Etapa 1

Medição no sistema de espectrometria gama com detector HPGe planar com o método pico-soma, usando solução de estoque do LNMRI/SEMRA/IRD.

Finalidade: testar o método antes da chegada da solução que foi importada, determinando a Atividade e comparando com a Câmara de ionização.

- Etapa 2

Medição no sistema de espectrometria gama com detector HPGe planar com o método pico-soma, usando solução nova (importação).

Finalidade: padronizar o ^{65}Zn pelo método pico-soma, comparando com outro método de calibração (câmara de ionização).

- Etapa 3

Avaliação das incertezas associadas às medições de Atividade e determinação das correções necessárias.

Finalidade: apresentar o valor de incerteza obtido pelo sistema.

3.5 CORREÇÕES APLICADAS

3.5.1 Decaimento Radioativo

Durante o tempo que as fontes radioativas foram medidas, ocorreram perdas nas taxas de contagem devidas ao decaimento radioativo. A correção destas perdas torna-se necessária principalmente nos radionuclídeos de meia-vida curta, onde estas perdas mostram-se mais significativas. Além disso, há a correção da Atividade da fonte para a data de referência [38]. A correção devido ao decaimento durante a contagem e para a data de referência pode ser expressa pela Equação 3.1.

$$N = N_0 \cdot F_D \cdot F_R \quad (3.1)$$

na qual

$$F_D = \frac{\lambda t_c}{1 - e^{-\lambda t_c}} \quad (3.2)$$

e

$$F_R = e^{-\lambda t} \quad (3.3)$$

Em que, N Atividade da fonte na data de referência;

N_0 Atividade da fonte no instante inicial de contagem;

λ constante de decaimento ($\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$)

F_D fator de correção de decaimento durante o tempo de contagem t_c

F_R fator de correção de decaimento para a data de referência, após decorrido o tempo t

3.5.2 Tempo Morto

O tempo mínimo que existe entre a detecção de dois eventos de modo a serem detectados como dois pulsos separados é chamado de tempo morto. Por ser o decaimento radioativo de natureza estatística, há sempre uma probabilidade de que um evento real seja perdido porque ocorreu logo após um outro evento. Esta perda

pode ser significativa quando altas contagens estão presentes, e correções devem ser consideradas.

Esta correção de tempo morto é feita pelo analisador multicanal, por meio de um cronômetro de rendimento que libera os pulsos que foram registrados no momento em que o circuito de tempo morto estava ocupado processando outro pulso [40].

3.5.3 Radiação de Fundo

A correção para radiação de fundo torna-se extremamente necessária, visto que existem eventos que incidem no detector e geram contagens que não são provenientes do decaimento da fonte. Na contagem da radiação de fundo são mantidos os mesmos ajustes e condições do sistema, porém sem a presença da fonte radioativa. A correção é realizada no próprio programa de análise de espectros [41], que subtrai o espectro da radiação de fundo do espectro da fonte medida.

3.5.4 Influência do fotopico de 1077 keV no pico-soma de 1022 keV do ⁶⁸Ga

Devido à baixa resolução do detector de NaI(Tl), as contagens do 1077 keV do decaimento do ⁶⁸Ga não aparecem no espectro, mas interferem nas contagens do pico-soma de 1022 keV e deverá ser considerada. As seguintes relações podem ser escritas:

$$A_1 = A_{511} = N_0 \varepsilon_1 P_{\gamma 1} (1 - t_1 P_{\gamma 1}) \quad (3.4)$$

$$A_{(soma)} = N_0 \varepsilon_1^2 P_{\gamma 1}^2 + N_0 \varepsilon_2 P_{\gamma 2} \quad (3.5)$$

$$N_T = N_0 [1 - (1 - t_1 P_{\gamma 1})^2 (1 - t_2 P_{\gamma 2})] \quad (3.6)$$

Em que: A_1 e A_{511} é a área sob o fotopico de 511 keV;

$A_{(soma)}$ inclui a contribuição do gama de 1077 keV representado por $N_0 \varepsilon_2 P_{\gamma 2}$ [9], e é a área sob o pico-soma;

- ε_1 e ε_2 são a eficiência de fotopico de 511 keV e 1077 do ^{68}Ga , respectivamente;
- $P_{\gamma 1}$ e $P_{\gamma 2}$ são as probabilidades de emissão gama dos fotopicos de 511 keV e 1077 keV, respectivamente;
- N_T área total sob todo o espectro.

Esta interferência é pequena, porém deve ser considerada. Para determinar o valor das contagens desta interferência, considera-se que as linhas para 1077 keV do ^{68}Ga e 1115 keV do decaimento do ^{65}Zn possuem a mesma eficiência de fotopico. Uma fonte de referência de ^{65}Zn é usada (nas mesmas condições de geometria de medição das fontes de ^{68}Ge) para obter o valor da eficiência de fotopico. Depois de conhecer as contagens da interferência, obtém-se os valores de contagem do 1022 keV individualmente, determinando então a Atividade.

3.6 ANÁLISE DAS INCERTEZAS APLICADAS AO MÉTODO PICO-SOMA

3.6.1 Incertezas Tipo A (Estatísticas)

Na determinação da Atividade (N_0) de uma fonte radioativa pelo Método pico-soma utiliza-se a equação:

$$N_0 = N_T + R \quad (3.7)$$

Sendo,

$$R = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} \quad (3.8)$$

Pela regra da propagação de incertezas obtém-se:

$$(\Delta N_0)^2 = (\Delta N_T)^2 + (\Delta R)^2 \quad (3.9)$$

Em que,

N_1 e N_2 áreas sob os fotopicos de um isótopo que emita dois raios gama em coincidência

N_{12} área sob o pico-soma

N_T contagem total do espectro extrapolado para $E=0$ keV

O valor de N_T é extraído do espectro e constitui-se da contagem bruta ($N_{bruta} = SUM_{(espectro)}$) subtraída a radiação de fundo.

Para facilitar o entendimento, a equação 3.9 é analisada por partes.

O tempo vivo do espectro da radiação de fundo geralmente é diferente do tempo vivo do espectro da fonte. A taxa de contagens da radiação de fundo $T_{(BG)}$ é expressa por:

$$T_{(BG)} = \frac{SUM_{(BG)}}{TV_{(BG)}} \quad (3.10)$$

Como:
$$N_T = N_{Bruta} - BG \quad (3.11)$$

e,
$$N_{Bruta} = SUM_{(espectro)} \quad (3.12)$$

então,
$$N_T = N_{Bruta} - T_{(BG)} \cdot TV_{(espectro)} \quad (3.13)$$

Levando em conta a extrapolação para energia em 0 keV:

$$N_T = N_{Bruta} - T_{(BG)} \cdot TV_{(espectro)} + (extr. p / E = 0keV) \quad (3.14)$$

Pela regra de propagação de incertezas:

$$(\Delta N_T)^2 = (\Delta N_{Bruta})^2 + [\Delta(T_{(BG)} \cdot TV_{(espectro)})]^2 + (\Delta ext \rightarrow 0)^2 \quad (3.15)$$

N_{bruta} , $T_{(BG)}$, $TV_{(espectro)}$, e a $(ext \rightarrow 0)$ são contagens e pela estatística de Poisson valem as relações:

$$(\Delta N_{Bruta})^2 = N_{Bruta} \quad (3.16)$$

$$[\Delta(T_{(BG)} \cdot TV_{(espectro)})]^2 = T_{(BG)} \cdot TV_{(espectro)} \quad (3.17)$$

$$(\Delta ext \rightarrow 0)^2 = ext \rightarrow 0 \quad (3.18)$$

Temos, então:

$$\boxed{(\Delta N_T)^2 = N_{Bruta} + T_{(BG)} \cdot Tv_{(espectro)} + (ext \rightarrow 0)} \quad (3.19)$$

A incerteza em R é:

$$R = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} \quad (3.20)$$

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2 = \left(\frac{\Delta N_1}{N_1}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_2}{N_2}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_{12}}{N_{12}}\right)^2 \quad (3.21)$$

R é calculado quando é calculado o N_0 . Tendo $\Delta R/R$ e R:

$$(\Delta R)^2 = \left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2 \cdot R^2 \quad (3.22)$$

A incerteza total ao quadrado é a soma das expressões 3.16 e 3.19.

$$N_0 = N_T + \frac{N_1 N_2}{N_{12}} = N_T + R \quad (3.23)$$

$$(\Delta N_0)^2 = \left(\frac{\partial N_0}{\partial N_T}\right)^2 (\Delta N_T)^2 + \left(\frac{\partial N_0}{\partial R}\right)^2 (\Delta R)^2 \quad (3.24)$$

$$\boxed{\Delta N_0^2 = 1^2 (\Delta N_T)^2 + 1^2 (\Delta R)^2} \quad (3.25)$$

3.6.2 Incertezas Tipo B

3.6.2.1 Incerteza no decaimento radioativo

A incerteza para o decaimento radioativo é estimada pela equação:

$$u_{decaimento} = \frac{\ln 2 \cdot \Delta t \cdot u_{T_{1/2}}}{(T_{1/2})^2} \quad (3.26)$$

Em que: Δt diferença de tempo entre a data da medição e a data de referência

$u_{T_{1/2}}$ incerteza na meia-vida do radionuclídeo

$T_{1/2}$ meia-vida do radionuclídeo

A incerteza expandida foi obtida por meio da composição quadrática das incertezas tipo A e tipo B, para um nível de confiança de 68,3% ($k=1$).

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

O desenvolvimento deste trabalho foi realizado em duas fases. Na primeira, foram realizadas medições com o ^{22}Na no detector de NaI(Tl) tipo poço com o intuito de determinar o valor do fator de coincidência da aniquilação (W) e usar este para determinar a Atividade do ^{18}F . Esta fase serviu como teste para confirmar que o valor de W seria menor que 1 e que a Atividade do ^{18}F poderia ser obtida por pico-soma, com Atividades e incertezas compatíveis com outros métodos de medição como Anti-coincidência e coincidência. Além disso, esta fase foi essencial para acertos de detalhes envolvendo a padronização de um radionuclídeo com meia-vida tão curta ($1,8288 \pm 0,0003$) h [1], como o tempo para preparar as fontes, tempo de contagem e sincronização de relógios. A segunda fase foi a montagem do arranjo experimental usando dois detectores de NaI(Tl) em geometria aproximadamente 4π para padronização absoluta dos radionuclídeos β^+ puros (^{18}F e ^{68}Ge). Como a padronização do ^{65}Zn foi realizada em um arranjo experimental distinto (detector HPGe planar), esta padronização aconteceu paralelamente à primeira fase do trabalho, ou seja, ao mesmo tempo que as medições do ^{22}Na .

4.1 RADIONUCLÍDEOS UTILIZADOS

Os radionuclídeos selecionados para serem padronizados foram: ^{22}Na , ^{18}F , ^{68}Ge e ^{65}Zn . A Tabela 4.1 apresenta as principais características das soluções usadas.

Tabela 4.1 Características das soluções utilizadas.

Radionuclídeo	Meio	Fornecedor
^{22}Na	50 μg Na/ml de H_2O (NaCl em H_2O)	IPL
^{18}F	Fluordesoxiglicose (FDG)	IEN/CNEN
$^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	HCl 0,1 mol/l	Eckert & Ziegler Analytics
^{65}Zn	30 μg ZnCl_2/g HCl 0,1 mol/l	Eckert & Ziegler Analytics

4.2 ARRANJOS EXPERIMENTAIS

Para a padronização dos radionuclídeos selecionados para este trabalho, três tipos de arranjos experimentais foram montados. A Tabela 4.2 apresenta o arranjo experimental em que cada radionuclídeo foi medido.

Tabela 4.2 Arranjo experimental usado para cada radionuclídeo padronizado.

Radionuclídeo	Arranjo Experimental
^{22}Na	1 e 2
^{18}F	1 e 2
$^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	2
^{65}Zn	3

4.2.1 Arranjo Experimental 1

O arranjo experimental 1 está esquematizado na Figura 4.1. Este arranjo experimental é caracterizado pelo uso de um detector de NaI(Tl) tipo poço.

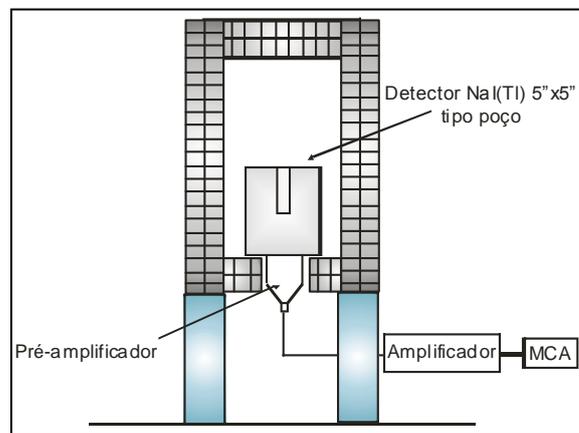


Figura 4.1 Arranjo experimental 1 com NaI(Tl) 5"x5" tipo poço.

Eletrônica usada no arranjo Experimental 1:

Detector de NaI(Tl) 5"x5" poço (fabricante: Bicron – modelo 5HW5/5); Pré-amplificador (fabricante: IRD); Amplificador (fabricante: Ortec - modelo 572); Analisador multicanal

(fabricante: Ethernin- modelo 919E); Fonte de alta tensão (fabricante: Ortec – modelo 478) e Programa para aquisição e análise de Dados - Maestro II

4.2.2 Arranjo Experimental 2

O arranjo experimental 2 está esquematizado na Figura 4.2 e a Figura 4.3 apresenta uma fotografia deste arranjo. Este arranjo experimental é caracterizado pelo uso de dois detectores de NaI(Tl), formando a geometria aproximadamente 4π .

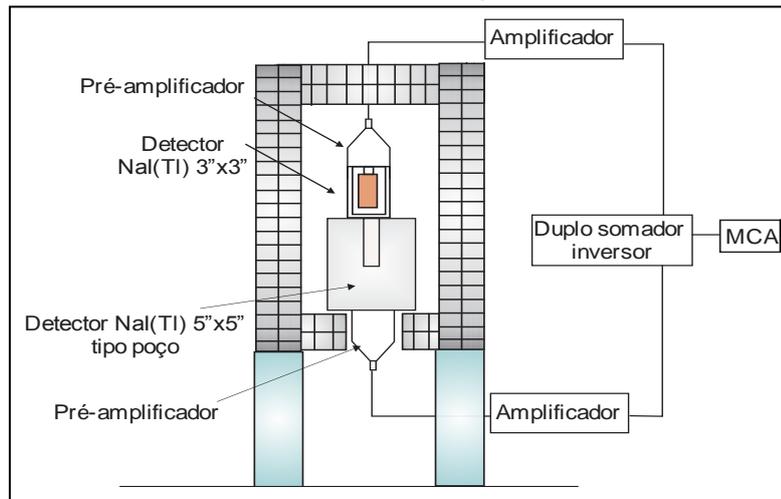


Figura 4.2 Esquema do arranjo experimental 2.

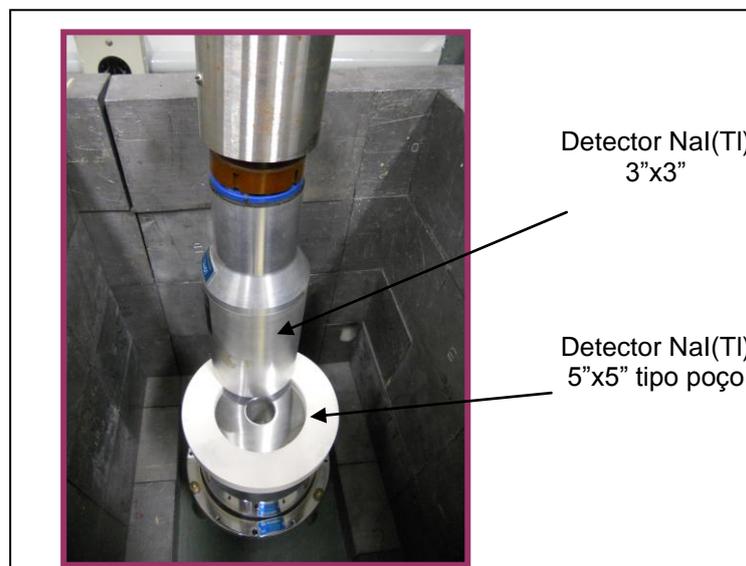


Figura 4.3 Fotografia do arranjo experimental 2.

Eletrônica usada no arranjo Experimental 2:

Detector de NaI(Tl) 5"×5" poço (fabricante: Bicron – modelo 5HW5/5); Detector de NaI(Tl) 3"×3" (fabricante: Quartz L. Silice – modelo 576376); Pré-amplificador

(fabricante: IRD); Amplificador (fabricante: Ortec - modelo 572); Analisador multicanal (fabricante: Ethernin- modelo 919E); Fonte de alta tensão (fabricante: Ortec – modelo 478); Somador de pulsos (fabricante: Ortec – modelo 533) e Programa para aquisição e análise de Dados - Maestro II

4.2.3 Arranjo Experimental 3

O arranjo experimental 3 está esquematizado na Figura 4.4.

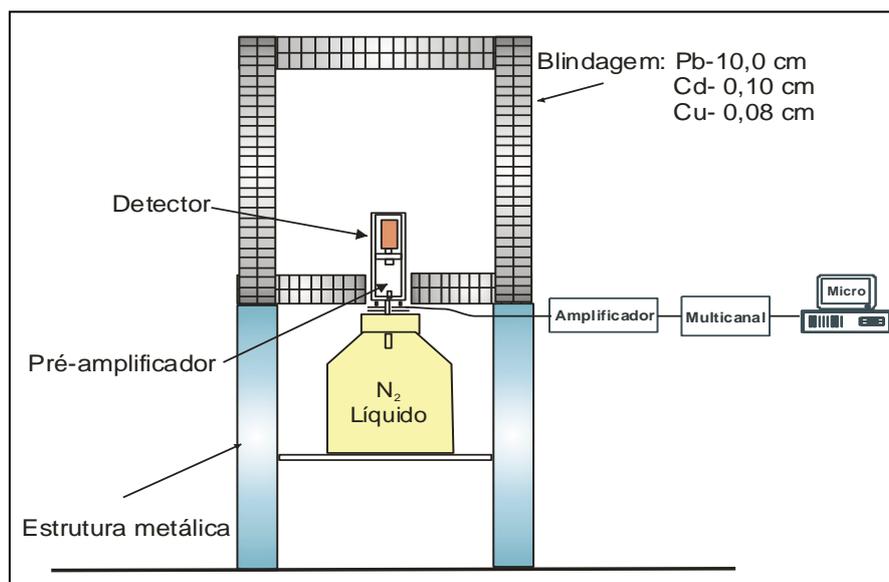


Figura 4.4 Arranjo experimental 3 utilizado para o método pico-soma.

Eletrônica usada no arranjo Experimental 3:

Detector de HPGe planar (fabricante: Canberra - modelo GL 2020R), Pré-amplificador (fabricante: Ortec); Amplificador (fabricante: Ortec – modelo 572); Analisador multicanal (fabricante: Ethernin- modelo 919E); Fonte de alta tensão (fabricante: Ortec - modelo 459); e Programa para aquisição e análise de Dados - Maestro II

No arranjo experimental 3 o detector está posicionado no centro de célula cúbica de volume interno de aproximadamente 1m^3 . Esta célula é constituída por chumbo com 10 cm de espessura de parede e é revestida internamente com camadas de cádmio e cobre para reduzir a fluorescência dos raios X do chumbo.

O detector usado neste arranjo experimental é um HPGe, tipo planar, que é próprio para energias que variam de 3 a 300 keV.

Com o objetivo de ampliar a faixa de trabalho deste detector, utilizou-se um dispositivo para dividir o sinal que sai do pré-amplificador, chamado divisor de tensão. Este dispositivo foi acoplado à saída do pré-amplificador. A representação do divisor de tensão está mostrada na Figura 4.5 e este mecanismo permitiu alcançar energias em torno de 1200 keV [42,43].

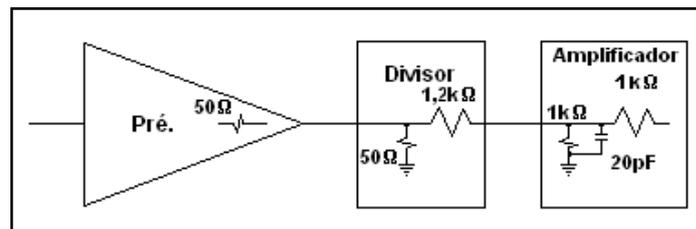


Figura 4.5 Esquema do divisor de tensão utilizado no detector planar.

4.2.4 Os Ativímetros

Os ativímetros são usados nos Serviços de Medicina Nuclear para medição da atividade dos radiofármacos a serem injetados nos pacientes. Os ativímetros são também denominados calibradores de radionuclídeos ou curiômetros.

Estes instrumentos normalmente possuem calibração de fábrica. A calibração pode ser feita de modo direto, usando soluções padrão de radionuclídeos de um Laboratório Nacional de padrões (ou rastreável a ele), ou de modo indireto, por comparação com um instrumento de referência. Na calibração indireta, a leitura do instrumento a ser calibrado e a do instrumento de referência diretamente calibrado são comparadas pela introdução de uma fonte de referência sob condições idênticas de medição no poço de cada uma das câmaras. As condições operacionais da fonte a ser medida são aplicadas e a leitura do primeiro instrumento é ajustada.

4.2.4.1 Ativímetro CRC15R

Tal qual os outros modelos de mercado, o ativímetro modelo CRC-15R de fabricação Capintec, pode ser assumido como um sistema de calibração secundário se sua calibração for realizada por meio de padrões rastreáveis a um Laboratório Nacional de Metrologia. É constituído por uma câmara de ionização tipo poço e módulo de leitura Capintec, apresentado na Figura 4.6.



Figura 4.6 Ativímetro CRC-15R em uso no LNMRI.

Cada unidade de leitura possui uma interface por meio da qual são realizadas as leituras e a seleção dos radionuclídeos, e internamente possui um eletrômetro e uma fonte de alta tensão ajustável. A interface onde são realizadas as leituras permite que a seleção do radionuclídeo seja feita tanto pelo nome do radionuclídeo ou por seu número de calibração, fornecendo fatores de correção em pA/MBq. Apresenta fatores de correção para 50 radionuclídeos pré-ajustados, porém fatores adicionais podem ser acrescentados, conforme a necessidade. Todas as informações são apresentadas numa tela de cristal líquido. A resolução deste ativímetro é de 0,01 MBq com exatidão do eletrômetro de $\pm 2\%$.

4.2.4.2 O ativímetro FIDELIS (Padrão secundário)

Este ativímetro de fabricação da Southern Scientific Ltd, foi desenhado para uso como calibrador de radionuclídeo padrão secundário de referência. A câmara de ionização foi planejada e desenvolvida pelo NPL (National Physical Laboratory) e o eletrômetro e software pela Southern Scientific. A câmara de ionização NPL é rastreada ao Sistema Internacional de Referência (SIR) no BIPM. A reprodutibilidade do sistema é melhor que 1%. A Figura 4.7 ilustra o sistema Fidelis em uso no LNMRI.

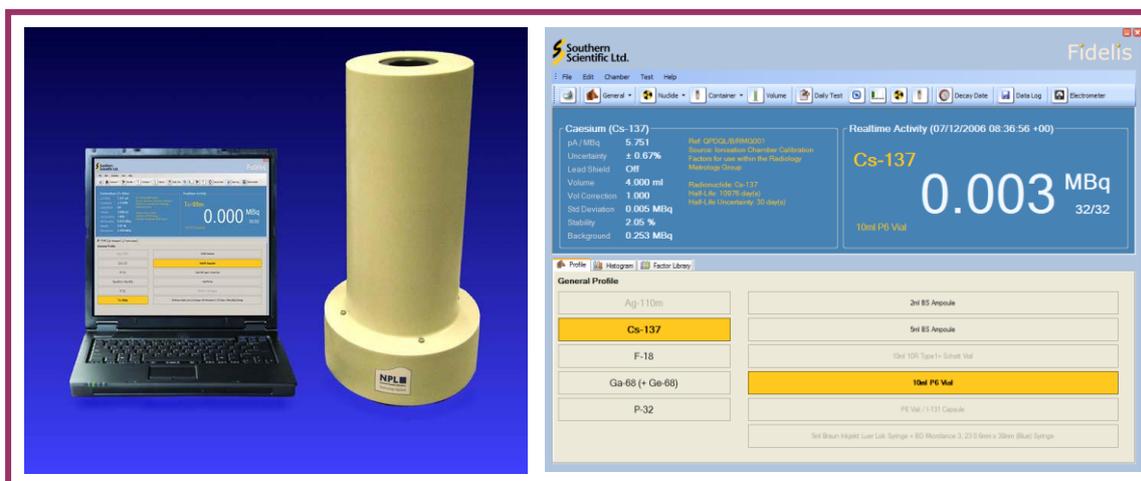


Figura 4.7 Ativímetro padrão secundário em uso no LNMRI e tela principal do software Fidelis.

4.3 CONFECÇÃO DAS FONTES

Para cada tipo de sistema de medição utilizado há um procedimento diferente para preparação das fontes a serem medidas.

4.3.1 Para o Método pico-soma

As fontes foram preparadas com o auxílio de um picnômetro, depositando-se gotas de solução do radionuclídeo em questão em um filme de poliestireno, com espessura de 0,05 mm, fixado em um anel de acrílico. O anel possui diâmetro externo de 25 mm, diâmetro interno de 4 mm e 1 mm de espessura. Depois de secas, as

fontes foram cobertas com o mesmo filme de poliestireno. A Figura 4.8 ilustra o esquema de montagem das fontes.

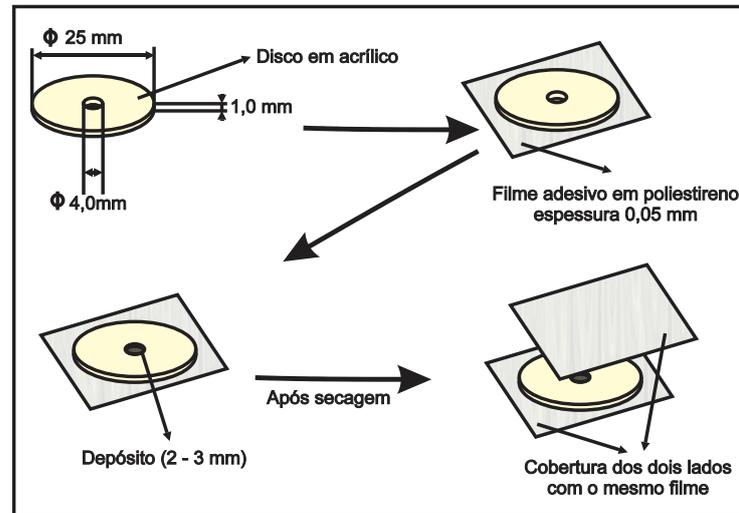


Figura 4.8 Esquema de montagem das fontes para medição no método pico-soma.

As massas das fontes foram determinadas por gravimetria, com pesagem diferencial utilizando o método do picnômetro [44], em uma balança Mettler Toledo modelo MT-5.

A Figura 4.9 apresenta uma fonte pronta para ser medida.

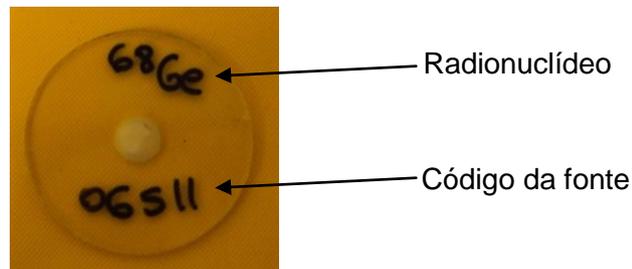


Figura 4.9 Fonte de ^{68}Ge em acrílico para o método pico-soma.

A quantidade de fontes preparadas para padronização de cada radionuclídeo está apresentada na Tabela 4.3.

Tabela 4.3 Quantidade de fontes preparadas de cada radionuclídeo.

Radionuclídeo	Quantidade de fontes preparadas
^{22}Na	05
^{18}F	06 fontes a cada rodada (03 com solução diluída e três com a solução original)
^{65}Zn	03 fontes com a solução antiga e 03 com a nova
^{68}Ge	03 secas e 03 sem secar

Para o ^{18}F foram feitas 06 fontes, sendo 03 fontes com a solução diluída (aproximadamente 1:40) e três fontes com a solução concentrada. Desta forma as fontes diluídas poderiam ser medidas imediatamente após a preparação destas, por apresentarem tempo morto mais baixo que as concentradas, enquanto que as concentradas só apresentavam tempo morto baixo a partir do dia seguinte.

Na revisão bibliográfica foi verificado que uma atenção especial deve ser dada à preparação de fontes de ^{68}Ge , devido à volatilidade apresentada pelos compostos deste elemento químico. Na secagem das soluções de ^{68}Ge , há uma perda de 20 a 30 % da Atividade quando a fonte é deixada secar naturalmente [30].

Sendo assim, optou-se neste trabalho por realizar a montagem das fontes de ^{68}Ge de duas maneiras:

- três fontes foram preparadas de acordo com a Figura 4.8, porém secando-as rapidamente em lâmpada infra-vermelha e cobrindo-as com o filme de poliestireno imediatamente após a secagem.

- três fontes foram preparadas de acordo com a Figura 4.8, porém sem deixar que secassem. Assim que foram pesadas, as fontes foram cobertas com o filme de poliestireno.

Foram realizadas medições nas fontes secas e líquidas para que fosse avaliada a perda por volatilização.

4.3.2 Para medição nos ativímetros

As fontes para medição nos Ativímetros foram preparadas em frascos 10R e P6, pois o ativímetro Fidelis que está no LNMRI está calibrado para determinação dos radionuclídeos nestes dois tipos de frasco. A figura 4.10 mostra os frascos 10R e P6.

Em cada frasco foi adicionada a massa de solução original do ^{18}F necessária para realizar as medições. A massa foi completada para 4 g com água destilada. As massas das fontes foram determinadas por gravimetria, com pesagem diferencial utilizando o método do picnômetro [44], em uma balança Mettler Toledo modelo MT-5.

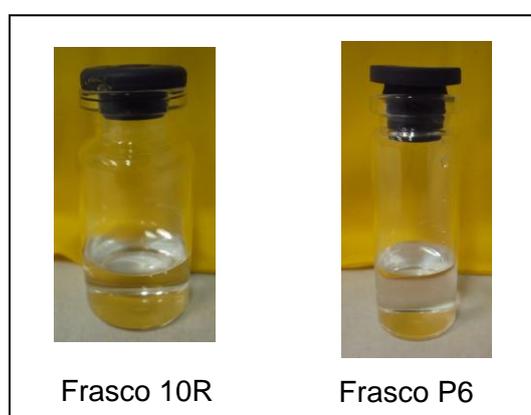


Figura 4.10 Frascos de vidro usados para leitura nos Ativímetros [45].

Dos radionuclídeos utilizados neste trabalho, somente o ^{18}F e o ^{68}Ge foram medidos nos ativímetros. Os outros radionuclídeos não são usados normalmente nos serviços de medicina nuclear, então não há a necessidade de calibração dos ativímetros para estes radionuclídeos.

4.3.3 Para medição no sistema de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$

Com o auxílio de um picnômetro, as fontes foram preparadas para serem usadas no sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$, depositando-se 2 a 3 gotas da solução a ser medida sobre a parte central do filme de VYNS (copolímero acrílico) aderido em anéis de aço inoxidável [36]. A massa depositada foi calculada por pesagem diferencial, usando o método do picnômetro[44]. O esquema de preparação das fontes está mostrado na Figura 4.11.

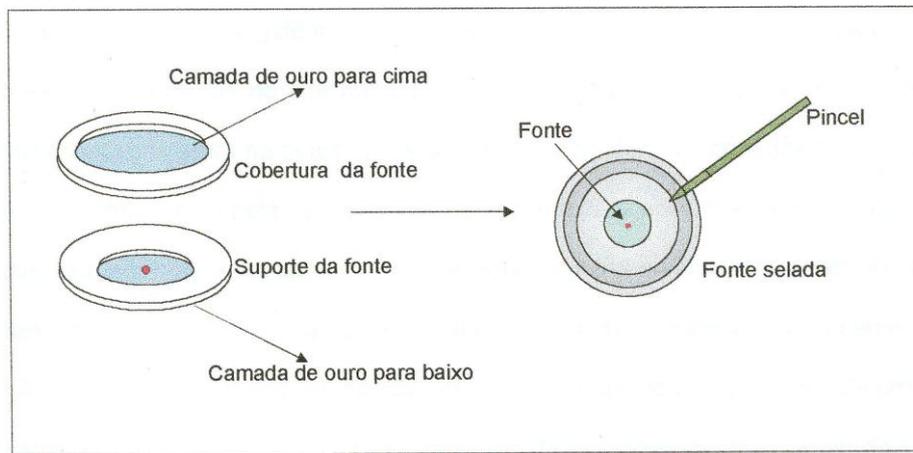


Figura 4.11 Esquema usado para preparar as fontes do sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$.

4.3.4 Para medição no sistema de anti-coincidência

O sistema de anti-coincidência participou neste trabalho somente das medições das fontes de ^{18}F e $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$.

Para as medições no sistema de anti-coincidência foram preparados nove frascos das mesmas soluções diluídas usadas para preparar as fontes do método pico-soma. A cada radionuclídeo a ser medido foi preparado um conjunto de frascos de vidro (próprios para cintilação em meio líquido) adicionando massas da solução diluída a 15 ml de coquetel cintilador comercial. Foram usados três cintiladores comerciais: Ultima Gold, HiSafe III e Instagel Plus (três frascos de cada coquetel). As massas das alíquotas retiradas para preparação das fontes foram determinadas por gravimetria, com pesagem diferencial utilizando o método do picnômetro [44], em uma balança Mettler Toledo modelo MT-5. A Figura 4.12 ilustra o frasco utilizado para o preparo das fontes.



Figura 4.12 Tipo de fonte preparada para o sistema de anti-coincidência [45].

4.3.5 Para verificação de impurezas (ampola) e medições na Câmara de ionização

Para cada radionuclídeo utilizado neste trabalho foi preparada uma diluição em ampola de 2 cm para verificação de impurezas e para ser medida na câmara de ionização com o intuito de determinar o fator de calibração da câmara de ionização para futuras medições do radionuclídeo neste sistema.

Cada ampola foi preparada com o auxílio de um picnômetro, depositando-se no interior da ampola quantidade suficiente de solução original para realizar as medições. O volume até a altura de 2 cm foi completado com o diluente normalmente utilizado para cada radionuclídeo. As massas das fontes foram determinadas por gravimetria, com pesagem diferencial utilizando o método do picnômetro [44], em uma balança Mettler Toledo modelo MT-5. A massa de solução final na ampola (solução radioativa+diluyente) foi de aproximadamente 2,7 g. A Tabela 4.4 apresenta o diluente usado para cada radionuclídeo.

Tabela 4.4 Diluentes usados para cada radionuclídeo utilizado.

Radionuclídeo	Diluente
^{18}F	água bidestilada
^{65}Zn	20 μg de ZnCl_2/g de HCl 0,1 mol/l
^{22}Na	50 μg Na/ml H_2O (NaCl)
$^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$	Solução de HCl 0,1 mol/l

4.4 CONTAGEM DA RADIAÇÃO DE FUNDO

Nos arranjos experimentais 1 e 2 a medição da radiação de fundo foi feita usando um suporte de acrílico sem radionuclídeo (branco) posicionado no fundo do poço, já no arranjo experimental 3 o suporte sem radionuclídeo (“branco”) foi colocado na posição zero (sobre o detector).

As medições da radiação de fundo ocorreram preferencialmente durante a noite e a cada rodada de medição de amostras de cada radionuclídeo, foi realizado uma medição de radiação de fundo no arranjo experimental usado.

Ao término das medições das amostras os espectros foram analisados utilizando o software Maestro [41], que permite descontar a radiação de fundo usando o espectro obtido para a medição deste.

4.5 CONTAGEM DAS AMOSTRAS

4.5.1 Medições do ^{22}Na

As cinco amostras de ^{22}Na foram medidas no arranjo experimental 1 e 2.

Primeiramente as fontes de ^{22}Na foram medidas no NaI(Tl) tipo poço (arranjo experimental 1), para que pudesse ser determinado o fator de coincidência da aniquilação (W).

4.5.1.1 Medições do ^{22}Na no Arranjo Experimental 1

O tempo de contagem da radiação de fundo foi de 54.514 segundos.

A contagem de cada fonte foi realizada com a fonte posicionada no fundo do poço. Os tempos de contagem das fontes variaram de 2200 segundos a 9000 segundos.

Neste arranjo experimental o espectro da fonte apresenta cinco fotopicos distintos, como mostrado na Figura 4.13. O primeiro é o gama de aniquilação de 511 keV, o segundo é o pico-soma de 1022 keV proveniente da soma de dois 511 keV resultantes da aniquilação, o terceiro fotopico é o gama de 1274 keV, o quarto é o pico-soma de 1785 keV oriundo da soma do 511 keV com o 1274 keV e finalmente o quinto pico é o pico-soma de 2296 keV, resultante da soma do 1022 keV com o 1274 keV.

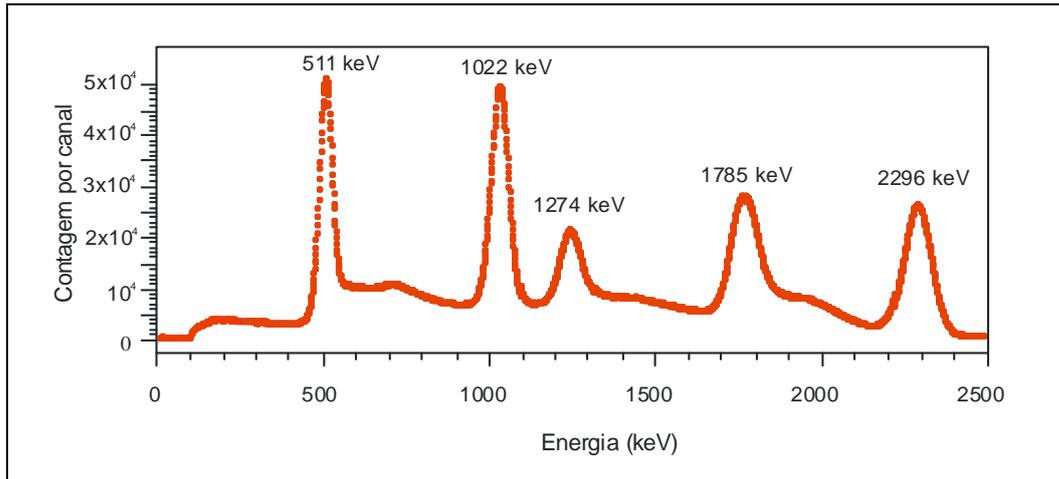


Figura 4.13 Espectro do ^{22}Na obtido no detector de NaI(Tl) poço.

Cálculo de W para a geometria $< 4\pi$

O cálculo de W foi realizado nesta etapa para aplicar este valor no cálculo da Atividade do ^{18}F , antes de fechar o NaI(Tl) 5"X5" tipo poço com o detector de NaI(Tl) 3"x3".

4.5.1.2 Medições do ^{22}Na no Arranjo Experimental 2

Também neste arranjo experimental cada fonte foi posicionada diretamente no fundo do poço do detector de NaI(Tl). Os tempos de contagens das fontes variaram de 7400 a 8400 segundos. O tempo de contagem da radiação de fundo foi de 54.621 segundos.

Neste arranjo experimental o espectro da fonte também apresenta cinco fotopicos distintos, como pode ser visto na Figura 4.14. Porém, observa-se que o pico de 1022 keV aparece com maior eficiência do que o de 511 keV. Isto se deve ao fato de que o arranjo experimental 4π propicia uma menor perda de contagem do fotopico de 1022 keV uma vez que os picos de aniquilação que escapariam no arranjo anterior agora passam a ser capturados e formarem a soma.

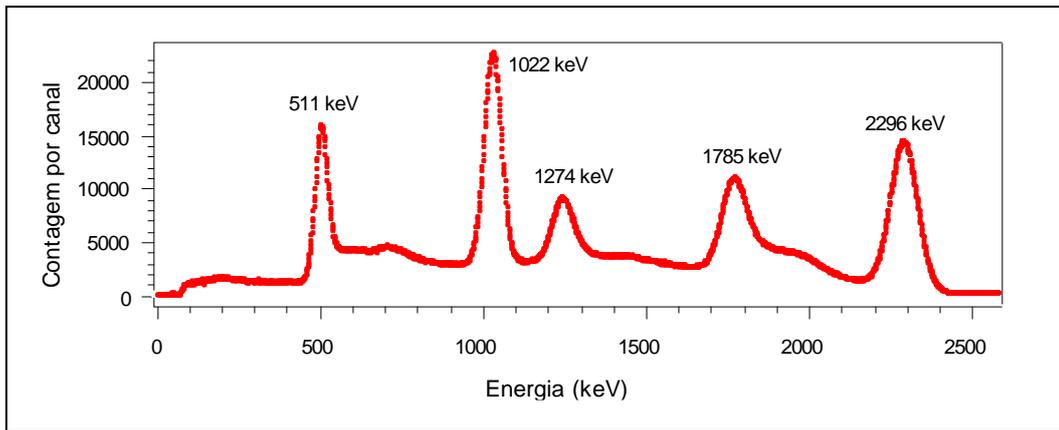


Figura 4.14 Espectro do ^{22}Na obtido no arranjo experimental 2.

Cálculo de W para a geometria aproximadamente 4π

O cálculo de W foi realizado nesta etapa para comprovação do valor esperado teoricamente ($W=1$).

4.5.2 Medições do ^{18}F

4.5.2.1 Medições no Arranjo experimental 1 – Testes Preliminares

Devido ao ^{18}F ser um emissor β^+ puro, as fontes preparadas com este radionuclídeo foram medidas no NaI(Tl) tipo poço. No espectro obtido verificam-se apenas dois picos, conforme ilustrado na Figura 4.15. O fotopico de 511 keV proveniente da aniquilação e o pico-soma de 1022 keV.

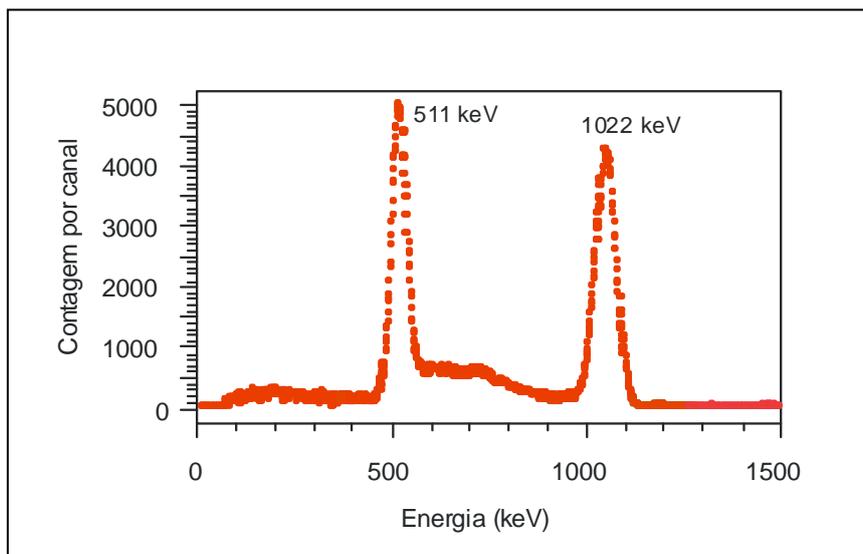


Figura 4.15 Espectro do ^{18}F obtido no detector de NaI(Tl) tipo poço.

Para se ter a certeza de que o método pico-soma para a medição do ^{18}F experimentalmente daria resultados como esperados teoricamente, foram realizados dois testes antes da montagem da geometria de medição 4π (arranjo experimental 2).

A cada rodada de medição do ^{18}F , com a chegada da solução ao laboratório, procedia-se a medição do frasco contendo a solução no Ativímetro para se ter noção da Atividade da solução original e, conseqüentemente, definir a diluição para preparação das fontes dos sistemas que participariam das medições.

Primeiramente a solução original era diluída em cada um dos frascos (10R e P6), e então medidos no Ativímetro CRC-15R e no NPL.

Em cada rodada, seis fontes foram preparadas para o método pico-soma, como descrito em 4.3, assim como foram preparadas as fontes para os métodos de coincidência e anti-coincidência.

Para os testes preliminares optou-se por preparar três fontes com a solução original e três fontes com uma solução diluída. Isto é devido ao fato de que o tempo morto das fontes é alto se for preparado com a solução original.

Estes dois testes preliminares serviram para que alguns detalhes fossem acertados, como: sincronização de relógios dos vários sistemas de medição utilizados e contagem das amostras em vários ciclos para avaliação de empilhamento de pulso,

4.5.2.2 Medições no Arranjo Experimental 2

Assim como no caso do ^{22}Na , no arranjo experimental 2, o espectro do ^{18}F apresenta o pico de 1022 keV com maior eficiência do que o de 511 keV, como pode ser verificado na Figura 4.16. A explicação desta observação é a mesma da descrita para o ^{22}Na .

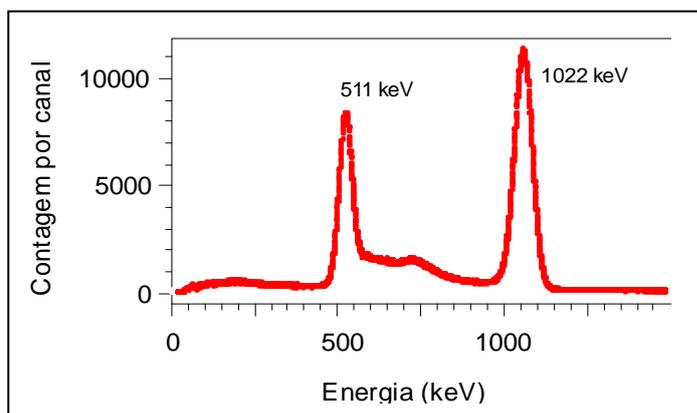


Figura 4.16 Espectro do ^{18}F obtido no arranjo experimental 2.

Neste arranjo experimental (2) foram realizadas três rodadas de medições. Com o arranjo experimental 2 montado, as fontes foram medidas levando-se em conta todas as observações apresentadas nas rodadas de teste. As fontes foram preparadas como nas rodadas de teste e as fontes diluídas e concentradas (original) foram medidas em vários ciclos, com o objetivo de avaliar o empilhamento de pulsos.

A Tabela 4.5 apresenta os dados referentes às medições realizadas no ^{18}F nas três rodadas realizadas neste arranjo experimental.

Tabela 4.5 Dados referentes às medições realizadas nas três rodadas do ^{18}F .

Rodada	Nº de ciclos		Tempo morto (%)		Tempo de contagem (s)	
	Original	Diluída	Original	Diluída	Fontes	Radiação de fundo
3ª	07	08	0,8-15	0,6-17	500-6.300	57.725
4ª	04	03	1,9-6,5	4-9	1.200-7.400	39.640
5ª	04	05	0,8-3,7	2-14	800-2.800	517.599

4.5.3 Medições do ^{65}Zn

As medições do ^{65}Zn foram realizadas com duas soluções, uma com impurezas de ^{60}Co e outra livre de impurezas.

4.5.3.1 Medições da solução de ^{65}Zn com impurezas

As três amostras de ^{65}Zn foram medidas no HPGe planar (arranjo experimental 3), pois o raio X de 8 keV proveniente da captura eletrônica, por ser coincidente com o gama de 1115 keV, forma um pico-soma de 1123 keV, e estes só podem ser medidos neste sistema devido ao dispositivo descrito em 4.2.3 que amplia a faixa de energia de operação do detector.

No detector de HPGe as fontes foram contadas na posição 0, ou seja, sobre o detector. Os tempos de contagem das fontes variaram de 32000 segundos a 96000 segundos. Os tempos de contagem da radiação de fundo variaram de 54.000 a 226.000.676 segundos.

No espectro obtido representado na Figura 4.17 nota-se a presença de três picos. Um raio X de 8 keV, um gama de 1115 keV e o pico-soma do raio X com o gama em 1123 keV. Além dos picos usados no cálculo da Atividade pelo método pico-soma, verifica-se também no espectro o fotopico de 511 keV (aniquilação do ^{65}Zn), um fotopico de 1173 keV e outro de 1332 keV, sugerindo impureza de ^{60}Co .

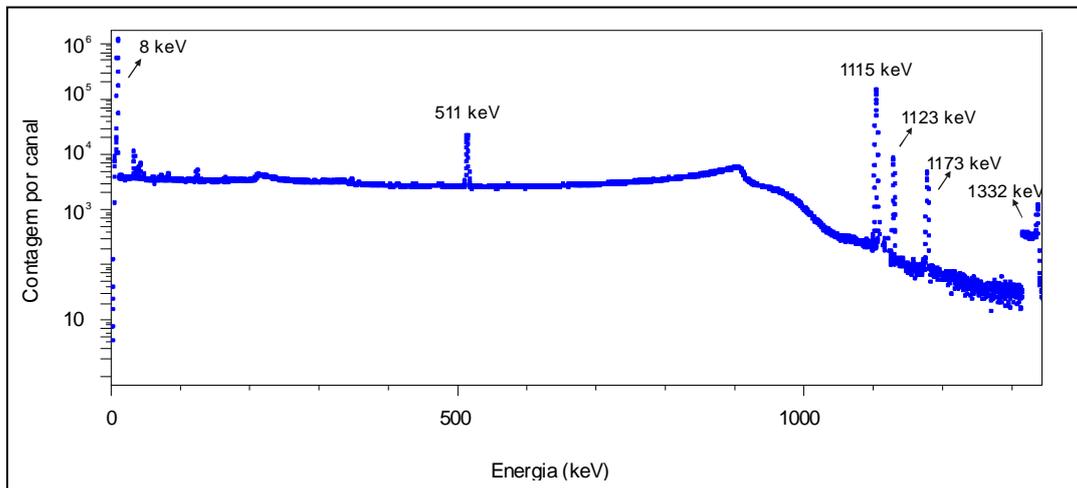


Figura 4.17 Espectro do ^{65}Zn obtido no detector de HPGe planar.

Consultando a literatura, verificou-se que uma possível impureza na produção do ^{65}Zn é o ^{60}Co [1], confirmando então que a amostra de ^{65}Zn apresenta impurezas de ^{60}Co oriundos do próprio processo de obtenção.

De acordo com a literatura, uma das limitações do método pico-soma é a presença de impurezas [12]. A partir da confirmação das impurezas na solução de ^{65}Zn , resolveu-se realizar trabalho de influência da impureza na padronização da Atividade.

4.5.3.2 Medições da solução de ^{65}Zn livre de impurezas

As três amostras de ^{65}Zn preparadas com a solução livre de impurezas foram da mesma forma contadas no detector de HPGe na posição 0, ou seja, sobre o detector.

Os tempos de contagem das fontes variaram de 13000 segundos a 13700 segundos e o da radiação de fundo foi de 80.000 segundos.

No espectro apresentado na Figura 4.18 nota-se os picos de 8 keV, 511 keV, 1115 keV e 1123 keV (soma), não ficando evidenciada a presença de impurezas.

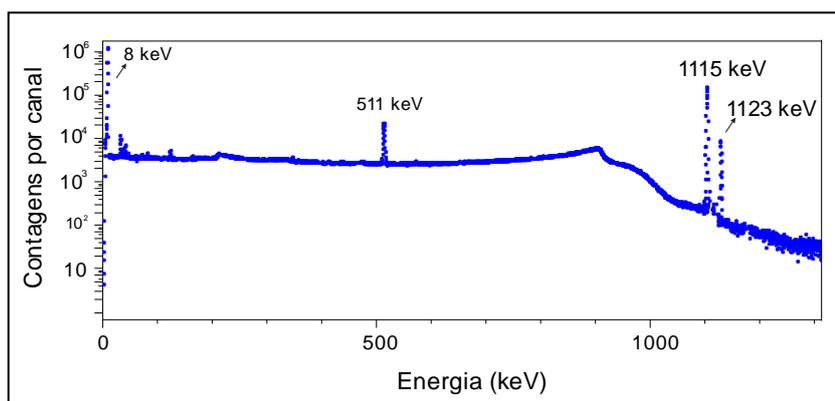


Figura 4.18 Espectro do ^{65}Zn obtido no detector de HPGe planar na solução sem impurezas.

4.5.4 Medições do $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$

Por ser o ^{68}Ga (descende do ^{68}Ge) um emissor β^+ , as fontes preparadas com este radionuclídeo foram medidas no arranjo experimental 2, assim como o ^{18}F . A Figura 4.19 ilustra o espectro obtido e da mesma forma que o ^{18}F verificam-se apenas dois picos. O fotopico de 511 keV proveniente da aniquilação e o pico-soma de 1022 keV.

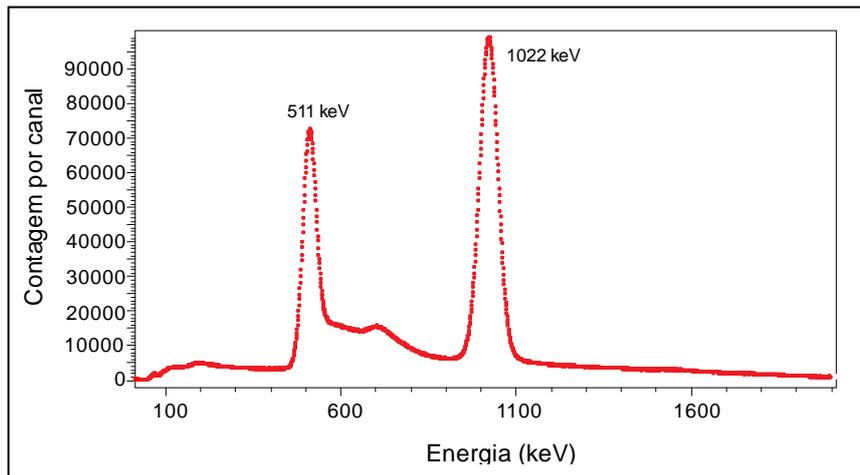


Figura 4.19 Espectro do $^{68}\text{(Ge+Ga)}$ obtido no arranjo experimental 2.

Seis fontes foram preparadas para o método pico-soma, como descrito em 4.3, assim como foram preparadas as fontes para o método de coincidência e anti-coincidência. As fontes foram posicionadas no fundo do poço. Os tempos de contagem das fontes variaram de 3300 a 6000 segundos. O tempo de contagem da radiação de fundo foi de aproximadamente 64.000 segundos.

Para a correção da interferência da linha de 1077 keV do ^{68}Ga no pico-soma de 1022 keV, foram usadas as fontes de ^{65}Zn preparadas para a determinação da atividade da solução de ^{65}Zn com o método pico-soma. As três fontes de ^{65}Zn foram medidas no arranjo experimental 2, posicionadas no fundo do poço (mesmas condições de geometria de medição das fontes de ^{68}Ge), para a obtenção da eficiência de fotopico. Depois de conhecer a eficiência de fotopico, foram determinadas as contagens da interferência e os valores da contagem do pico de 1022 keV. A atividade corrigida foi então determinada.

4.6 CÁLCULO DA ATIVIDADE

Os dados para cálculo da Atividade das fontes foram retirados do espectro, após análise criteriosa.

Nas planilhas de todos os radionuclídeos medidos foram introduzidas as correções de decaimento durante a contagem.

Os dados retirados do espectro são:

- N_{bruta} que significa a contagem bruta de todo o espectro (sem desconto da radiação de fundo)

- N_{total} que corresponde à contagem de todo o espectro descontando a radiação de fundo

- Áreas dos fotopicos com incertezas associadas (para cada fotopico a área escolhida é a de menor incerteza)

- Tempo real, tempo vivo e tempo morto

- Data e horário da medição

- Extrapolação para energia zero

O cálculo da Atividade foi executado em uma planilha EXCEL, usando a equação geral do pico-soma.

4.7 IMPUREZAS

Para cada radionuclídeo medido neste trabalho, a ampola preparada na geometria de 2 cm foi medida no detector de germânio planar, para verificar se a solução continha impurezas gama (X ou gama).

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Cada sistema usado na padronização dos radionuclídeos apresenta as suas peculiaridades. Para tanto, cada sistema apresenta um limite para tempo morto. Dependendo do sistema, as fontes foram preparadas com a solução original de cada radionuclídeo ou com uma solução diluída. Para efeito de comparação entre os métodos, os resultados apresentados referem-se sempre à solução original, chamada neste trabalho de solução-mãe.

5.1 PADRONIZAÇÃO DO ^{22}Na E DETERMINAÇÃO DO W PARA O DETECTOR DE NaI(Tl) 5x5 POÇO

A Tabela 5.1 apresenta a Atividade e os valores de W obtidos para o ^{22}Na no NaI(Tl) tipo poço 5"x5" (geometria $< 4\pi$) e no NaI(Tl) tipo poço 5"x5" coberto com outro detector de NaI(Tl) 3"x3" formando então a geometria aproximadamente 4π . Os valores de Atividade, W1 e W2 foram obtidos de medições realizadas nas cinco fontes de ^{22}Na preparadas. O resultado apresentado é a média das medições, que apresentaram desvios percentuais entre as fontes de 0,37 % para Atividade, 0,10 e 0,12 % para W1 e W2 respectivamente.

Tabela 5.1 Resultados obtidos para o ^{22}Na – Data de referência: 01/11/2009 às 12 h.

Arranjo Experimental	Atividade (kBq/g)	U (%) k=1	W1		W2	
			Valor	U (%) k=1	Valor	U (%) k=1
1	262,091	0,15	0,984	0,08	0,984	0,14
2	262,215	0,11	1,005	0,05	1,008	0,05
Data de Referência: 01/11/2009 às 12 h						

Verifica-se na tabela 5.1 que o valor de W fica em torno de 0,98 se é usado apenas o detector de NaI(Tl) tipo poço (geometria $< 4\pi$). Quando o detector tipo poço é coberto com o outro detector de NaI(Tl) formando a geometria aproximadamente 4π , o W passa a ser aproximadamente 1, como citado por Brinkman em seu trabalho III de 1963 [10].

Diante dos resultados apresentados pelo método pico-soma para Atividade do ^{22}Na foi realizada comparação com os valores para o método de coincidência $4\pi\beta-\gamma$. A Tabela 5.2 mostra esta comparação.

Tabela 5.2 Comparação entre as Atividades determinadas para o ^{22}Na no método pico-soma e no $4\pi\beta-\gamma$ - Data de referência: 01/11/2009 às 12 h.

	pico-soma no arranjo experimental 1	pico-soma no arranjo experimental 2	$4\pi\beta-\gamma$
Atividade (kBq/g)	$262,091 \pm 0,15 \%$	$262,215 \pm 0,11 \%$	$262,733 \pm 0,36 \%$
desvio do $4\pi\beta-\gamma$	-0,24 %	-0,20 %	-
Data de referência: 01/11/2009 às 12 h			

Na comparação com o método $4\pi\beta-\gamma$ verifica-se que os resultados são bem coerentes, tanto em valor de Atividade quanto em relação à estimativa de incerteza. Os dois arranjos experimentais usados na medição do ^{22}Na mostraram resultados muito próximos, com incertezas também bem coerentes.

Na Tabela 5.3 são apresentados os principais componentes de incerteza considerados na estimativa de incerteza para as medições do ^{22}Na .

Tabela 5.3 Principais componentes de incerteza considerados na estimativa de incerteza para o ^{22}Na .

Componente de Incerteza	Tipo	(%)
Pesagem das fontes	B	0,10
Tempo vivo	B	0,01
Decaimento radioativo	B	0,006
Contagem estatística*	A	0,037
Incerteza combinada (U) (k=1)		0,11

*Incluída a incerteza na contagem da radiação de fundo e extrapolação para energia zero.

5.2 PADRONIZAÇÃO DO ^{18}F

A padronização do ^{18}F foi realizada em cinco rodadas. As duas primeiras rodadas foram usadas como testes para acerto de procedimento.

Em cada rodada as medições foram realizadas nos calibradores de radionuclídeos, no método pico-soma, no sistema de coincidência $4\pi\beta-\gamma$ e sistema de Anti-coincidência. As medições realizadas nos ativímetros tinham a finalidade de servir como base para definir a diluição a ser feita na preparação das fontes, permitir a comparação dos ativímetros do LNMRI com os dos produtores de radiofármacos e determinar os fatores de calibração para o ^{18}F nestes ativímetros.

A Tabela 5.4 apresenta os resultados encontrados para cada rodada do ^{18}F .

Tabela 5.4 Resultados de Atividade com incertezas associadas para cada método de padronização nas soluções de ^{18}F por rodada.

Rodada	Método	Atividade (MBq/g)	U (%) k=1	Diferença Relativa (%)	Data de Referência
1 ^a	Sem resultados				
	Método pico-soma	2095,937	0,29	-	
2 ^a	Anti-coincidência	1939,582	0,31	- 7,5	04/03/2010 9 h 13 min
	Coincidência $4\pi\beta-\gamma$	1979,700	1,1	- 5,5	
	Método pico-soma	922,385	0,23	-	
3 ^a	Anti-coincidência	896,630	0,34	- 2,9	15/09/2010 12 h
	Coincidência $4\pi\beta-\gamma$	983,960	0,92	+ 6,3	
	Método pico-soma	873,866	0,27	--	
4 ^a	Anti-coincidência	847,767	0,26	- 3,0	10/11/2010 12 h
	Coincidência $4\pi\beta-\gamma$	--	--	--	
	Método pico-soma	620,118	0,26	--	
5 ^a	Anti-coincidência	617,146	0,26	- 0,48	15/12/2010 12 h
	Coincidência $4\pi\beta-\gamma$	--	--	--	

Verifica-se pelos resultados apresentados na Tabela 5.4, que as rodadas foram necessárias para acerto de procedimento. A cada rodada era uma nova solução (meia-vida muito curta), por isso a dificuldade de acerto de procedimento.

Na 5^a rodada percebe-se que o valor do método pico-soma é bem compatível com o valor do Anti-coincidência. A diferença entre os dois foi de 0,48 %. Esta rodada foi a referência para determinação do fator de calibração para a câmara de ionização e ativímetros.

Na tabela 5.5 são apresentados os principais componentes de incerteza considerados para o ^{18}F .

Tabela 5.5 Principais componentes de incerteza para as medições do ^{18}F no método pico-soma na 5ª rodada de medições.

Componente de Incerteza	Tipo	(%)
Pesagem das fontes	B	0,10
Tempo vivo	B	0,01
Decaimento radioativo	B	0,15
Contagem estatística*	A	0,19
Incerteza combinada (U) (k=1)		0,26

*Incluída a incerteza na contagem da radiação de fundo e extrapolação para energia zero.

5.3 PADRONIZAÇÃO DO ^{65}Zn

5.3.1 Solução de ^{65}Zn com impureza de ^{60}Co

Os resultados em Atividade obtidos para o ^{65}Zn com o método pico-soma foram comparados com medições realizadas em uma câmara de ionização 4π tipo poço, a qual está rastreada à comparação chave (BIPM.RI (II) - K2.Zn-65). Esta comparação está reportada na Tabela 5.6.

Tabela 5.6 Comparação entre os valores obtidos para o ^{65}Zn no método pico-soma e na câmara de ionização. Data de referência: 14/04/2010 às 12 h.

Método	Atividade (kBq/g)	U (%) k=1
Pico-soma	42,794	0,25
Câmara de ionização	42,744	0,85

O valor da atividade por unidade de massa do pico-soma obtido é a média ponderada de nove medições para as três fontes preparadas. A diferença encontrada entre os dois métodos foi de apenas 0,12 %.

Os resultados das medições com o ^{65}Zn mostraram que os valores estão bem coerentes com o valor da câmara de ionização.

Na tabela 5.7 são apresentados os principais componentes de incerteza considerados para a estimativa de incerteza nas medições do ^{65}Zn .

Tabela 5.7 Principais componentes de incerteza para as medições do ^{65}Zn no método pico-soma.

Componente de Incerteza	Tipo	(%)
Pesagem das fontes	B	0,05
Tempo vivo	B	0,01
Decaimento radioativo	B	< 0,01
Contagem estatística*	A	0,24
Incerteza combinada (U) (k=1)		0,25

*Incluída a incerteza na contagem da radiação de fundo e extrapolação para energia zero.

5.3.2 Solução de ^{65}Zn isenta de impurezas

O resultado de Atividade encontrado pelo método pico-soma para a nova solução de ^{65}Zn corresponde ao valor da média aritmética das medições das três fontes preparadas para esta padronização. A Tabela 5.8 apresenta os resultados do método pico-soma comparando com valores obtidos na câmara de ionização. O valor da câmara de ionização está rastreado à comparação-chave (BIPM.RI (II) - K2.Zn-65).

Tabela 5.8 Comparação dos resultados da solução de ^{65}Zn sem impurezas com resultado da Câmara de ionização - Data de referência: 28/03/2011 às 12 h.

Método	Atividade (kBq/g)	U (%) k=1
Pico-soma	119,367	0,45
Câmara de ionização	119,808	0,80

O valor de Atividade encontrado para a solução de ^{65}Zn usando o método pico-soma está bem coerente com o valor encontrado pela câmara de ionização. A diferença entre os dois métodos foi de 0,36 %, não diferindo estatisticamente da diferença encontrada entre os dois métodos para a solução com impurezas.

Na tabela 5.9 são apresentados os principais componentes de incerteza para a padronização do ^{65}Zn no método pico-soma.

Tabela 5.9 Principais componentes de incerteza para as medições da nova solução de ^{65}Zn no método pico-soma.

Componente de Incerteza	Tipo	(%)
Pesagem das fontes	B	0,10
Tempo vivo	B	0,01
Decaimento radioativo	B	< 0,01
Contagem estatística*	A	0,44
Incerteza combinada (U) (k=1)		0,45

*Incluída a incerteza na contagem da radiação de fundo e extrapolação para energia zero.

5.4 PADRONIZAÇÃO DO $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$

Os resultados obtidos para o $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ com o método pico-soma foram comparados com medições realizadas no método de anti-coincidência e com o valor do certificado de origem. A comparação está reportada na Tabela 5.10.

As fontes secas apresentaram valores de atividade diferindo apenas de 0,03 % das fontes líquidas. Verifica-se então que o procedimento usado para secar as fontes foi eficiente, visto que não foi constatada perda por evaporação, como relatado no trabalho de Grigorescu et al [30] e citado por Zimmerman [31].

O valor da atividade obtida no método pico-soma é a média aritmética das duas medições realizadas nas seis fontes (janeiro e fevereiro de 2011), considerada a correção para a interferência do pico de 1077 keV no 1022 keV. A correção relativa à interferência do 1077 keV foi de 0,26 %.

Tabela 5.10 Comparação de resultados entre método pico-soma e Anti-coincidência para a solução de $^{68}\text{(Ge+Ga)}$ -Data de referência: 01/01/2011 às 12 h.

Método	Atividade (MBq/g)	U (%) k=1
Pico-soma	6,347	0,14
Valor certificado	6,572	1,4
Anti-coincidência	6,624	0,18

Em relação ao valor do certificado a diferença para o método pico-soma é de -3,4 %, enquanto que para o método de anti-coincidência é de +0,8 %.

Na tabela 5.11 estão reportados os principais componentes de incerteza considerados para a estimativa de incerteza nas medições do $^{68}\text{(Ge+Ga)}$.

Tabela 5.11 Principais componentes de incerteza para o $^{68}\text{(Ge+Ga)}$ método pico-soma.

Componente de Incerteza	Tipo	(%)
Pesagem das fontes	B	0,10
Tempo vivo	B	0,01
Decaimento radioativo	B	0,01
Contagem estatística*	A	0,10
Incerteza combinada (U) (k=1)		0,14

* Incluída a incerteza na contagem da radiação de fundo e extrapolação para energia zero.

CONCLUSÕES

A metodologia utilizada no desenvolvimento deste trabalho permitiu a padronização absoluta do ^{18}F , $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$, ^{22}Na e ^{65}Zn aplicando um método muito simples, rápido e eficiente.

^{22}Na

A determinação do fator de coincidência para os raios de aniquilação (W) no arranjo experimental formado por dois detectores de NaI(Tl) dispostos em geometria de aproximadamente 4π , permitiu provar que o método pico-soma para os emissores β^+ puros é um método absoluto e portanto não necessita de padrões.

A comparação da Atividade de ^{22}Na feita para o pico-soma e para o $4\pi\beta-\gamma$ mostrou que os resultados são coerentes e apresentam incertezas compatíveis.

Os dois métodos utilizados para padronização da Atividade do ^{22}Na mostraram resultados consistentes com incerteza menores que 0,5 %. A incerteza estimada para o método pico-soma foi cerca de três vezes menor quando comparada com a incerteza do método de coincidência. Este estudo mostrou que o método pico-soma pode ser usado para a padronização absoluta do ^{22}Na como um método alternativo ao método de coincidência.

^{18}F

O método pico-soma mostrou ser uma excelente alternativa para a padronização de emissores β^+ puros, principalmente para o ^{18}F que tem meia-vida muito curta, pois este método pode ser realizado em um tempo bem menor que os métodos clássicos. Os resultados obtidos pelo método pico-soma apresentou valores bem próximos daqueles obtidos pelo método de anti-coincidência, com incertezas compatíveis. Vale

ressaltar que o método de anti-coincidência é reconhecido para a padronização deste radionuclídeo.

A padronização deste radionuclídeo permitiu a retenção do fator de calibração na câmara de ionização e nos ativímetros do LNMRI, preparando o laboratório para trabalhos futuros de rastreabilidade dos calibradores de radionuclídeos dos serviços de medicina nuclear ou dos produtores de radiofármacos.

⁶⁵Zn

A padronização do ⁶⁵Zn no HPGe planar somente foi possível com a introdução do dispositivo divisor de tensão, que ampliou a faixa de energia, permitindo a visualização no espectro do fotopico de 1115 keV e o pico-soma de 1123 keV.

O valor de atividade encontrado para a solução de ⁶⁵Zn no método pico-soma apresentou-se bem coerente com o valor da câmara de ionização, cujo fator de calibração está rastreado à comparação-chave BIPM.RI (II) - K2.Zn-65 de 2002. A incerteza associada mostrou-se compatível com os métodos primários clássicos utilizados em metrologia de radionuclídeos.

⁶⁸(Ge+Ga)

Como estatisticamente não houve diferença significativa entre os resultados de atividade por unidade de massa das fontes secas e líquidas, pode-se concluir que se a secagem das fontes sólidas de ⁶⁸(Ge+Ga) é executada de maneira rápida e se a fonte é imediatamente coberta, não há perda significativa de ⁶⁸Ge devido à volatilidade deste elemento.

Mesmo considerando a correção das contagens do fotopico de 1077 keV no pico-soma de 1022 keV, ainda há uma diferença significativa de valor de atividade encontrada entre o método pico-soma e o anti-coincidência. Essa diferença demonstra que esforços deverão ser realizados nos dois métodos para estudar que outras correções são necessárias para melhorar a convergência dos valores. A realização do

método pico-soma usando um detector de germânio poço é recomendado visto que este detector possui melhor resolução que o NaI(Tl), possibilitando assim a separação do fotopico de 1077 keV do 1022 keV.

CONSIDERAÇÕES FINAIS

Para os radionuclídeos que decaem por emissão de pósitrons (β^+ puros), o método pico-soma usando dois detectores de NaI(Tl) dispostos em geometria de aproximadamente 4π apresentou-se como um método extremamente importante, pois além de permitir a determinação da Atividade com incertezas associadas baixas, permite que a padronização seja realizada rapidamente, facilitando a padronização de radionuclídeos que possuem meia-vida muito curta, como é o caso do ^{18}F .

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

[1] BÉ, M. M., CHISTÉ, V., HELMER, R. G., 2010, LNHB/CEA. Nucléide Decay Data, <www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>.

[2] BARROS, D. C., 2001, *Implantação do Sistema $4\pi\gamma$, com Detector de NaI(Tl), Tipo poço, para a calibração de Radionuclídeos Emissores Gama*, M.Sc., Dissertação, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro (PUC-RJ), Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[3] BÉ, M. M., 2006, "Activity measurements and determination of gamma-ray emission intensities in the decay of ^{65}Zn ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, p. 1396-1402.

[4] SAHAGIA, M.; IVAN, C.; GRIGORESCU, E., CAPOGNI, M., DE FELICE, P., FAZIO, A., 2004, "Standardization of ^{65}Zn by $4\pi\text{PC-}\gamma$ coincidence counting method with efficiency extrapolation", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 60, pp. 423-427.

[5] KARMALITSYN, N. I.; SAZONOVA, T. E.; SEPMAN, S. V.; ZANEVSKY, A. V., 2004, "Standardization of ^{65}Zn ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 60, pp. 391- 395.

[6] IWAHARA, A.; SILVA, M. A. L.; FILHO, A. E. C.; BERNARDES, E. M. O.; DELGADO, J. U., 2005, "Determination of disintegration rates and γ -ray emission probabilities of ^{65}Zn and ^{241}Am ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 63 pp. 107–113.

[7] HAVELKA, M.; AUERBACH, P.; SOCHOROVÁ, J., 2006, "Standardisation of ^{54}Mn and ^{65}Zn using a software coincidence counting system", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, pp. 1215-1219.

- [8] ALMEIDA, M. C. M.; IWAHARA, A.; POLEDNA, R.; DA SILVA, C. J.; DELGADO, J. U., 2007, "Absolute desintegration rate and 320 keV γ -ray emission probability of ^{51}Cr ", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 580, pp. 165-168.
- [9] BRINKMAN, G. A., ATEN, A. H. W., VEENBOER, Jr. And J., 1963, "Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal-I - Calibration by Means of a Single Nuclide", *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 14, pp. 153-157.
- [10] BRINKMAN, G. A., ATEN, A. H. W., 1963, "Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal-III – Calibration of β^+ -Emitters", *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 14, pp. 503-510.
- [11] HUTCHINSON, J. M. R.; MANN, W. B.; MULLEN, P. A., 1973, "Sum-peak Counting With Two Crystals", *Nuclear Instruments and Methods*, v. 112, pp. 187-196.
- [12] BRINKMAN, G. A.; LINDNER, L.; VEENBOER, J. TH., 1977, "Sumpeak Calibration of ^{123}I ", *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 28, pp. 271-275.
- [13] DIAS, M. S. and KOSKINAS, M. F., 1995, "Accidental Summing Corrections in ^{125}I Activity Determination by the Sum-Peak Method", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 46, pp. 945-948.
- [14] WANG, Z.; ZHANG X.; CHANG, Y.; LIU, D., 2001, "The determination of ^{125}I activity using sum-peak method with a well-type HPGe-detector-based spectrometer", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 459, pp. 475-481.

- [15] KIM, I. J.; PARK, C. S.; CHOI, H. D., 2003, "Absolute calibration of ^{60}Co by using sum-peak method and an HPGe detector", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 58, pp. 227-233.
- [16] CAPOGNI, M.; CECCATELLI, A.; DE FELICE, P.; FAZIO, A., 2006, "Random-summing correction and pile-up rejection in the sum-peak method", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, pp. 1229-1233.
- [17] DA SILVA, M. A. L.; POLEDNA, R.; IWAHARA, A.; DA SILVA, C. J.; DELGADO, J. U.; LOPES, R. T., 2006, "Standardization and decay data determinations of ^{125}I , ^{54}Mn and ^{203}Hg ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, pp. 1440-1445.
- [18] VIDMAR, T.; KOSSERT, K.; NÄHLE, O. J.; OTT, O., 2009, "Application of the sum-peak method to activity standardizations of extended ^{60}Co sources", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 67, pp. 160-163.
- [19] NOVKOVIC, D. N.; NADJDJERDJ, L. J.; DJURASEVIC, M. M.; VUKANAC, I. S., KANDIC, A. B.; MILOSEVIC, Z. A., 2011, "The Direct Activity Measurement of ^{133}Ba by using HPGe Spectrometer", *Nuclear Technology & Radiation Protection*, v. 26, pp. 64-68.
- [20] NÄHLE, O.; KOSSERT, K.; KLEIN, R.; 2008, "Activity standardization of ^{22}Na ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 66, pp. 865-871.
- [21] DIAS, M. S.; TONGU, M. L. O.; TAKEDA, M. N.; KOSKINAS, M. F., 2010, "Monte Carlo simulation to positron emitter standardized by means of $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence system - Application to ^{22}Na ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, pp. 1362-1366.

- [22] IWAHARA, A.; POLEDNA, R.; SILVA, M. A. L.; TAUHATA, L.; OLIVEIRA, E. M.; DELGADO, J. U., 2010, "Use of sum-peak and coincidence counting methods for activity standardization of ^{22}Na ", *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Jeju Island, Korea, 26-30 April 2010.
- [23] ZIMMERMAN, B. E.; KUBICEK, G. J.; CESSNA, J. T., PLASEJAK, P. S.; ECKELMAN, W. C., 2001, "Radioassays and experimental evaluation of dose calibrator settings for ^{18}F ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 54, pp.113-122.
- [24] ROTETA, M.; GARCIA-TORAÑO, E.; BARQUERO, L. R., 2006, "Standardization of ^{18}F by coincidence and LSC methods", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, pp. 1199-1202.
- [25] SCHRADER, H.; KLEIN, R.; KOSSERT, K., 2007, "Activity standardisation of ^{18}F and ionisation chamber calibration for nuclear medicine", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 65, pp. 581-592.
- [26] YAMADA, T., KAWADA, Y., SATA, Y., YUNOKI, A., HINO, Y., 2008, "Standardization of ^{18}F using the $4\pi(\beta+\gamma)$ integral counting technique", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 66, pp. 909-913.
- [27] CESSNA, J. T.; SCHULTZ, M. K.; LESLIE, T.; BORES, N., 2008, "Radionuclide calibrator measurements of ^{18}F in a 3 ml plastic syringe", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 66, pp. 988-993.
- [28] BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F.; BRANCACCIO, F., 2008, "Standardization of ^{18}F by means of $4\pi(\text{PS})\beta-\gamma$ plastic scintillator coincidence system", *IEEE Transactions on nuclear Science*, v. 55, N° 3, pp. 1767-1773.

- [29] NEDJADI, Y.; BAILAT, C.; CAFFARI, Y.; BOCHUD, F., 2010, "Standardisation of ^{18}F by a coincidence method using full solid angle detectors", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, pp. 1309-1313.
- [30] GRIGORESCU, E. L.; NEGUT, C. D.; LUCA, A.; RAZDOLESCU, A. C.; TANASE, M., 2004, "Standardization of $^{68}(\text{Ge}+\text{Ga})$ ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 60, pp. 429-431.
- [31] ZIMMERMAN, B. E.; CESSNA, J. T.; FITZGERALD, R., 2008, "Standardization of $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ Using Three Liquid Scintillation Counting Based Methods", *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, v. 113, pp.265-280.
- [32] ZIMMERMAN, B. E.; CESSNA, J. T., 2010, "Development of a Traceable Calibration Methodology for Solid $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ Sources Used as a Calibration Surrogate for ^{18}F in Radionuclide Activity Calibrators", *The Journal of Nuclear Medicine*, v. 51, nº 3, pp. 448-453.
- [33] GÜNTHER, E., 1998, "Standardization of EC nuclides ^{55}Fe and ^{65}Zn with the CIEMAT/NIST LSC Tracer Method", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 49, pp. 1055-1060.
- [34] KOSSERT, K.; JANßEN, H.; KLEIN, R.; SCHNEIDER, M.; SCHRADER, H., 2006, "Standardization and nuclear decay data of ^{65}Zn ", *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, pp. 1420-1424.
- [35] TAUHATA, L.; SALATI, I. P. A.; PRINZIO, R. DI; PRINZIO, M. A. R. R. DI, 2006, *Fundamentos de Radioproteção e Dosimetria*, 6ª revisão, fevereiro/2006 – Rio de Janeiro- IRD/CNEN.

[36] BERNARDES, E. M. O., 2001 – *Ho166m: Padrão Multi-gama para a Determinação de Atividade de Radionuclídeos por Meio de Detectores Semicondutores*. Dissertação de M.Sc., PUC, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[37] IWAHARA, A., 1979 – *Técnica de Traçador para Medida de Atividade Específica de ^{63}Ni , Utilizando um Sistema de Coincidência $4\pi\beta-\gamma$* . Dissertação de M.Sc., IME, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[38] DA SILVA, C. J., 2008, *Implementação de um sistema de Anti-coincidência 4π CL-NaI(Tl) com cronometragem em tempo Vivo e Tempo Morto Extendível*. Tese de D.Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[39] ABNT/INMETRO, 1998. “Guia para Expressão da Incerteza de Medição”, 2ª ed. Brasileira, ABNT, INMETRO, SBM, Rio de Janeiro.

[40] DELGADO, J. U., 2000, *Probabilidades de Emissão X e Gama Determinadas por Espectrometria em Regiões Complexas*. Tese de D.Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[41] MAESTRO II, 2002. Software Operator’s Manual. Maestro for Windows. Version 5.33. EG&G. ORTEC.

[42] DA SILVA, R. L., 2007 – *Metrologia das Razões Isotópicas no Urânio e Plutônio por Espectrometria de Fótons*. Dissertação de M.Sc., IME, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

[43] DA SILVA, R. L.; ESTRADA, J.J. S.; DELGADO, J. U.; POLEDNA, R.; ALMEIDA, M. C. M., 2007 – “Alteração da Faixa de Detecção e Calibração de um Sistema de

Espectrometria Gama”, *Revista Militar de Ciência e Tecnologia*, 3º Quadrimestre de 2007, pp. 22-26.

[44] CAMPION, P. J., 1975, “Procedures for Accurately Diluting and Dispersing Radioactive Solutions”, Bureau International de Poids et Mesures, (Monografie BIPM-1).

[45] REZENDE, E. A., 2011, *Padronização Absoluta do ¹⁷⁷Lu e do ¹¹¹In*. Dissertação de M.Sc., IRD/CNEN, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.