

PADRONIZAÇÃO PRIMÁRIA DE RADIONUCLÍDEOS PRODUZIDOS NO REATOR IEA-R1

*Marina F. Koskinas, Denise S. Moreira, Ione M. Yamazaki,
Franco Brancaccio, Renato Semmler, Mauro S. Dias*

Centro do Reator de Pesquisas – IPEN-CNEN/SP
Av. Professor Lineu Prestes, 2242
05508-000 São Paulo – SP
koskinas@ipen.br

RESUMO

Neste trabalho, apresentamos uma retrospectiva dos radionuclídeos produzidos no reator IEA-R1, que foram padronizados no Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do CRPq, IPEN-CNEN/SP. Para este propósito, o laboratório dispõe de sistemas de calibração primários, utilizando a técnica de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$, aplicando uma metodologia específica para cada radionuclídeo. Neste método, os elétrons e os raios-X são usualmente registrados por um detector 4π consistindo em um contador proporcional, cintilador plástico ou cintilador líquido. Os raios gama são registrados por meio de detectores semicondutores de HPGe ou de cristais de NaI(Tl). Neste trabalho são apresentados os diagramas eletrônicos

empregados, os métodos de análise de dados e de incertezas implementados por meio da aplicação da metodologia de análise de covariância, além da aplicação de métodos computacionais de simulação dos sistemas de medida pela técnica de Monte Carlo. A padronização de radionuclídeos em sistemas absolutos tem possibilitado a determinação de parâmetros nucleares, como: probabilidade de emissão gama por decaimento e coeficientes de conversão interna, entre outros, contribuindo para a melhoria nos dados nucleares, proporcionando a formação de recursos humanos de alto nível, por meio de mestrados, doutorados e pós-doutorados, além da participação em congressos e publicação de artigos em periódicos internacionais.

1. INTRODUÇÃO

O Laboratório de Metrologia Nuclear (LMN) do IPEN, desde a sua fundação em 1964, vem desenvolvendo métodos e sistemas de medida primários para padronização de radionuclídeos de uso em medicina nuclear, na pesquisa básica e aplicada, visando sua capacitação no atendimento da demanda de padrões com boa exatidão e na determinação de parâmetros nucleares de radionuclídeos, para a calibração de sistemas secundários como câmaras de ionização e espectrômetros gama.

Neste trabalho, apresentamos uma retrospectiva dos radionuclídeos produzidos no reator IEA-R1 e padronizados no LMN. Para este propósito, o laboratório dispõe de sistemas de calibração primários, utilizando a técnica de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, aplicando uma metodologia específica para cada radionuclídeo. Neste método, os elétrons e os raios-X são usualmente registrados por um detector 4π constituído por um contador proporcional, cintilador plástico ou cintilador líquido. Os raios gama são registrados por meio de detectores semicondutores de HPGGe ou de cristais de NaI(Tl).

A análise de dados dos radionuclídeos padronizados é feita pelo uso de programas computacionais elaborados no próprio laboratório e a análise das incertezas é feita pela aplicação da metodologia de análise de covariâncias.

A padronização de radionuclídeos em sistemas absolutos tem possibilitado a determinação de parâmetros nucleares, como: probabilidade de emissão gama por decaimento e coeficientes de conversão interna, entre outros, contribuindo para a melhoria nos dados nucleares, proporcionando a formação de recursos humanos de alto nível, por meio de mestrados e doutorados, e a publicação de artigos em periódicos internacionais.

2. MÉTODO DE COINCIDÊNCIAS $4\pi\beta-\gamma$

O método de medida absoluta de atividade de radionuclídeos, referido como um método primário, é o método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$, que é aplicável na padronização de radionuclídeos que emitem radiações distintas e simultâneas, como: $\beta-\gamma$, $\alpha-\gamma$, $RX-\gamma$ etc., envolvendo para isso o uso de dois detectores diferentes, um para cada tipo de radiação emitida simultaneamente. A determinação de atividade de uma fonte radioativa utilizando este método pode ser realizada com grande exatidão, dependendo apenas de grandezas observáveis [1,2].

Usualmente, o sistema de coincidências é constituído por um contador proporcional a gás fluente ou pressurizado, em geometria 4π , para a detecção de partículas beta, elétrons Auger, raios-X ou partículas alfa, associado a um ou dois detectores para a detecção da radiação gama coincidente, como cristais de cintilação ou detectores semicondutores. Outros detectores podem ser utilizados no lugar do contador proporcional, como: cintiladores líquidos, em que a geometria 4π é obtida por meio de uma solução cintiladora contendo o material radioativo ou cintiladores plásticos em geometria 4π [3].

O planejamento para a medição da atividade de um radionuclídeo deve levar em conta o seu esquema de desintegração e a definição dos detectores mais indicados para esta medição, sendo que em sua maioria os esquemas de desintegração são complexos envolvendo vários ramos de decaimento, com variados tipos de emissões radioativas [4], nestes casos, aplica-se a técnica de extrapolação da eficiência [5,6], que consiste na variação da eficiência beta em função das contagens observadas e extrapolando-se a eficiência a 100%, obtém-se o valor da atividade.

A variação da eficiência beta pode ser feita de duas maneiras distintas: a primeira é variar a eficiência na própria amostra de modo a alterar a auto absorção, o que pode ser feito pela adição de quantidades variadas de carregador ou adicionando absorvedores externos sobre a fonte; outro método de variação é a variação da eficiência por discriminação eletrônica [7].

2.1. Sistemas de coincidências $4\pi\beta-\gamma$

Os sistemas eletrônicos empregados pelo LMN, na padronização de radionuclídeos pelo método de coincidências $4\pi\beta-\gamma$, foram classificados como: Sistema eletrônico convencional, Sistema TAC (*Time Amplitude Converter*) e Sistema SCS (sistema de coincidências por software), sendo descritos a seguir.

2.1.1. Sistema eletrônico convencional

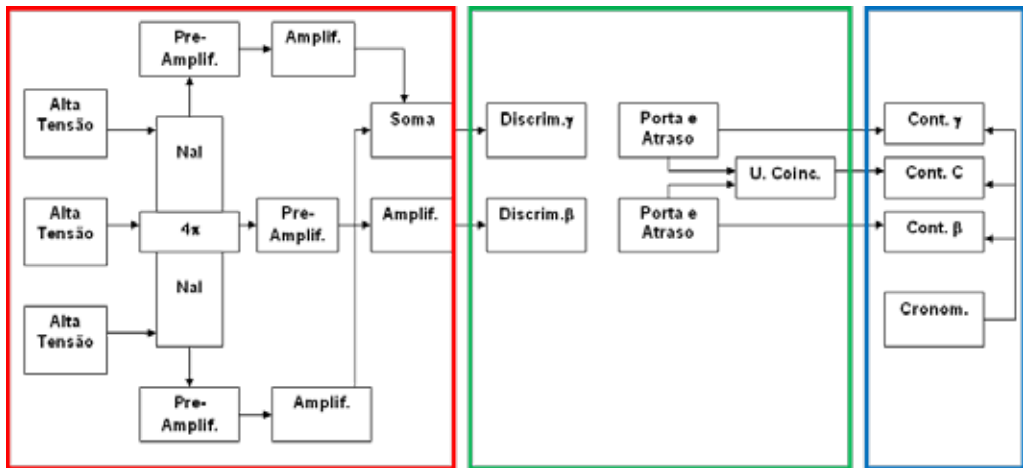
Constituído de três partes principais que estão destacadas por cores distintas no diagrama de blocos apresentado na Figura 1.

A primeira parte (em vermelho) é constituída pelos detectores alimentados pelas fontes de alta tensão, e conectados aos pré-amplificadores e aos amplificadores.

A segunda parte (em verde) corresponde aos discriminadores para seleção dos gamas de interesse na via gama e para a eliminação do ruído eletrônico na via beta, conectados a módulos de porta e atraso, que permitem a fixação dos tempos mortos e de resolução e a um módulo lógico para registro das coincidências beta-gama dentro de um tempo de resolução pré-fixado.

A terceira parte (em azul) é constituída pelos contadores e pelo cronômetro/temporizador para registro das contagens beta, gama e coincidência. A atividade é determinada por meio de um programa de computador denominado DILUI.

Figura 1 – Diagrama de blocos do sistema convencional de coincidência.



2.1.2. Sistema TAC (Time Amplitude Converter)

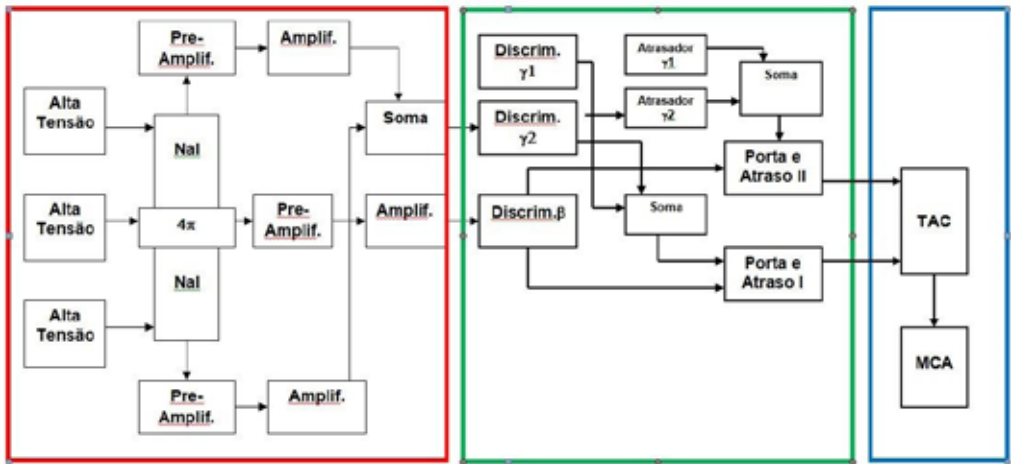
Com o passar do tempo e em função de problemas técnicos com os contadores, foi necessária uma modificação do procedimento de aquisição de dados surgindo assim o sistema TAC desenvolvido no LMN [8], que utiliza um módulo conversor de tempo em amplitude denominado *Time to Amplitude Converter*. Na Figura 2 é apresentado o diagrama de blocos que corresponde a este sistema.

No sistema TAC, a parte inicial (em vermelho) que contém os detectores, foi mantida sem qualquer alteração.

A segunda parte (em verde) foi alterada para introdução de módulos de atraso para permitir o registro das vias beta, gama e coincidências, com diferentes atrasos nos tempos, para serem enviadas ao módulo TAC.

A terceira parte (em azul) foi totalmente modificada com a introdução do uso do módulo *Multi Channel Analyzer* (MCA) que registra as amplitudes enviadas pelo TAC, construindo um espectro correspondente às contagens beta, gama e coincidência. A atividade é determinada por meio de um programa de computador denominado CONTAC, Versão15.

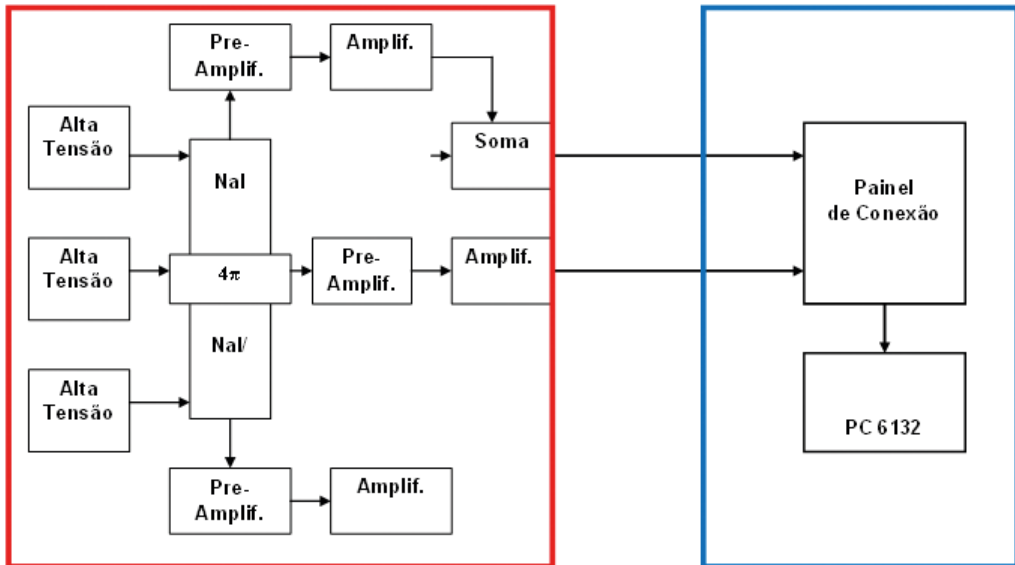
Figura 2 – Diagrama de blocos do arranjo eletrônico do sistema TAC.



2.1.3. Sistema SCS (Sistema de Coincidências por Software)

Com a evolução dos microcomputadores surgiu a oportunidade de uma mudança radical no registro das medidas do sistema de coincidências, por meio da digitalização dos sinais, dando origem ao sistema SCS [9]. Este diagrama do sistema de coincidências por software SCS, foi desenvolvido no LMN e é apresentado na Figura 3.

Figura 3 – Diagrama de Blocos do SCS.



Neste sistema, a parte em vermelho que corresponde aos detectores foi mantida como tal, no entanto, a parte em verde, que é a mais complexa e mais trabalhosa para ajustar as condições de medida, foi eliminada e a parte em azul foi substituída pelo sistema de coincidências por software, constituído por uma placa de aquisição de dados da National Instruments, modelo PC6132, gerenciada por um software desenvolvido em LabView 8.5 [10] e instalada em um computador tipo PC, utilizando plataforma Windows. A atividade é determinada por meio de um programa de computador denominado SCTAC, Versão 6 [11], e pelo programa CAT[12], por meio da reconstrução dos dados após a digitalização dos sinais de amplitude de pulso e tempo de ocorrência.

2.2. Sistema de espectrometria gama

O LMN, para complementação de suas padronizações possui além dos sistemas de coincidência $4\pi\beta-\gamma$, um espectrômetro gama, em geometria definida, com detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe), calibrado com fontes radioativas padrões. A padronização de radionuclídeos em sistemas absolutos, em conjunto com a medida em espectrômetros de HPGe possibilitam a determinação de parâmetros nucleares, como: probabilidade de emissão gama por decaimento, coeficientes de conversão interna, entre outros, quando determinados com boa exatidão, são de grande importância e contribuem diretamente para a melhoria

do conhecimento dos esquemas de desintegração e portanto, na qualidade dos resultados em que estes radionuclídeos são empregados.

3. PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS PRODUZIDOS NO REATOR IEA-R1

Por meio do sistema de coincidências $4\pi\beta-\gamma$ empregando os arranjos eletrônicos descritos, aplicando-se o método de coincidências, foi possível a padronização de inúmeros radionuclídeos,

Os primeiros radionuclídeos padronizados, produzidos no reator IEA-R1, empregando o sistema convencional foram ^{126}I (n,γ) ^{127}I , ^{31}Si (n,γ) ^{32}Si e ^{41}K (n,γ) ^{42}K , tendo sido também determinadas as probabilidades de emissão gama por decaimento dos raios gama mais intensos destes radionuclídeos, que apresentaram valores concordantes com a literatura [13-15].

Com a introdução do sistema TAC, foram padronizados outros radionuclídeos, sendo que estas padronizações foram efetuadas nos dois sistemas para validação do novo sistema. Entre os quais destacamos os radionuclídeos produzidos no reator IEA-R1 por meio de reações de captura: ^{185}Re (n,γ) ^{186}Re , ^{197}Au (n,γ) ^{198}Au , ^{71}Ga (n,γ) ^{72}Ga , ^{241}Am (n,γ) ^{242g}Am , ^{137}Cs (n,γ) ^{138}Cs , ^{57}Co (n,γ) ^{58}Co e ^{63}Cu (n,γ) ^{64}Cu [16-21]. A partir destas padronizações, além da determinação das probabilidades de emissão gama por decaimento foi possível também a medida de algumas secções de choque de reações de captura de nêutrons em radionuclídeos radioativos [22].

Com a implementação do sistema SCS vários outros radionuclídeos produzidos no reator IEA-R1 foram padronizados, desta vez aplicando-se duas técnicas distintas de variação da eficiência beta: pela colocação de absorvedores externos às fontes radioativas ou por discriminação eletrônica. Foram eles: ^{181}Ta (n,γ) ^{182}Ta , ^{165}Ho (n,γ) ^{166}Ho e ^{166m}Ho (n,γ) ^{167}Ho [23-25].

4. MÉTODOS DE ANÁLISE DE DADOS

Visando à melhoria dos métodos de padronização de radionuclídeos, durante os últimos anos, a implementação dos métodos de análise dados e da determinação de incertezas por meio da aplicação da metodologia de análise de covariância. Esta metodologia é aplicada à incerteza final, considerando todas as incertezas parciais envolvidas nas medições e levando em conta todas as correlações possíveis entre cada par de incertezas [26,27]. No LMN, esta metodologia tem sido aplicada para a determinação das incertezas finais, seja da taxa de desintegração do radionuclídeos em estudo, na determinação da curva de eficiência gama do espectrômetro, bem como na determinação dos parâmetros nucleares [28].

5. APLICAÇÃO DA TÉCNICA DE MONTE CARLO

Tendo em vista a melhoria do planejamento do método de padronização de um radionuclídeo, foram desenvolvidos métodos computacionais de simulação dos sistemas de medida pela técnica de Monte Carlo.

Para simular o método de coincidência aplicado ao sistema $4\pi\beta-\gamma$, o LMN desenvolveu um código chamado Esquema [29] que aplica a técnica de Monte Carlo por meio do código MCNP6 [30]. Este programa tem sido aplicado a diversos radionuclídeos utilizando-se os métodos de variação da eficiência beta por meio de absorvedores colocados na fonte radioativa ou por variação nos níveis de discriminação eletrônica da via beta [31].

Nos últimos anos, o programa Esquema tem sido aperfeiçoado para que pudesse ser aplicado a uma variedade maior de radionuclídeos que possuem um esquema de desintegração com especificidades não consideradas nas versões anteriores do programa [32].

O método de Monte Carlo é também usado para a determinação teórica da curva de eficiência do HPGe aplicada no cálculo de correções como: soma em cascata e auto absorção na fonte [33].

6. CONCLUSÃO

O Reator IEA-R1 tem sido essencial para as pesquisas desenvolvidas pelo LMN, ampliando o número de radionuclídeos padronizados pelo método absoluto e possibilitando a determinação de diversos parâmetros nucleares de interesse para a comunidade científica, com destaque para as probabilidade de emissão gama por decaimento cujo conhecimento com boa exatidão é de grande importância, uma vez que, implica diretamente na melhoria do conhecimento dos esquemas de desintegração e portanto, na qualidade dos resultados em que os radionuclídeos são empregados. As padronizações dos radionuclídeos produzidos no reator IEA-R1 e a determinação dos parâmetros nucleares deram origem a vários trabalhos apresentados em conferências ou aceitos para publicação em periódicos internacionais, além de ter contribuído para a formação de recursos humanos de alto nível, por meio da elaboração de inúmeras dissertações de mestradados e teses de doutorados do programa de Tecnologia Nuclear do IPEN-USP e a vários pós-doutorados financiados pelo CNPq (Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico).

AGRADECIMENTOS

A equipe do LMN agradece a todos os colaboradores que participaram ou tem participado nas pesquisas relacionadas ao uso do Reator IEA-R1, a saber: alunos de graduação e pós-graduação do LMN nos diversos níveis; ao IPEN: pela equipe de irradiação do reator, à oficina mecânica e à direção do Centro do Reator de Pesquisas (CRPq), que tem dado o máximo de apoio às atividades do LMN nesta área.

REFERÊNCIAS

1. BAERG, A. P. Measurement of radioactivity disintegration rate by the coincidence method. *Metrologia*, v. 2, n. 1, p. 23-32, 1966.
2. BAERG, A. P. Absolute measurement of radioactivity. *Metrologia*, v. 3, n. 4, p. 105-108, 1967.
3. BACCARELLI, A. M.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Standardization of F-18 by means of $4\pi(\text{PC})$ -gamma plastic scintillator coincidence system. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, v. 55, n. 3, p. 1767-1773, 2008.
4. KOSKINAS, M. F.; FONSECA, K. A.; DIAS, M. S. Disintegration rate measurement of a Eu-152 solution. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 56, p. 441-445, 2002.
5. BAERG, A. P. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*, v. 112, p. 143-150, 1973.
6. CAMPOIN, P. J. The standardization of radioisotopes by beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, v. 4, p. 232-248, 1959.
7. LAVRAS, W. O. *et al.* Primary Standardization of Cr-51 Radioactive Solution. In: V REGIONAL CONGRESS ON RADIATION PROTECTION AND SAFETY – REGIONAL IRPA CONGRESS, 29 abr.-4 maio 2001, Recife – PE.
8. MOREIRA, D. S. *Padronização dos radionuclídeos multiemissores gama $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e ^{72}Ga e determinação de suas intensidades gama por decaimento.* 2005. 116 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo (USP), São Paulo, 2005. Disponível em: <http://repositorio.ipen.br:8080/xmlui/handle/123456789/11295>.

9. TOLEDO, F. *et al.* Design of electronic system with simultaneous registering of pulse and event time applied to $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence method. *In: 2008 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM CONFERENCE, MEDICAL IMAGING CONFERENCE; 16th ROOM TEMPERATURE SEMICONDUCTOR DETECTOR WORKSHOP*, 19-25 out. 2008, Dresden/Alemanha. *2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2008. p. 1003-1005. DOI: 10.1109/NSSMIC.2008.4774564.
10. National Instruments. LabVIEW, 2014. Disponível em: <http://www.ni.com/labview>.
11. DIAS, M. S. SCTAC: a code for activity calculation based on software coincidence counting measurements. *Internal Report*, IPEN-CNEN/SP, 2010.
12. BRANCACCIO, F. *Metodologia de aquisição de dados e análise por software, para sistemas de coincidências $4\pi\beta\text{-}\gamma$ e sua aplicação na padronização de radionuclídeos, com ênfase em transições metaestáveis*. 2013. 146 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo (USP), São Paulo, 2013. DOI: 10.11606/T.85.2013.tde-03102013-104013.
13. FONSECA, K. A.; KOSKINAS, M. F.; DIAS, M. S. Gamma-ray probability per decay of I- 126. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 49, n. 9, p. 1373-1376, 1998).
14. KOSKINAS, M. F.; MAIDANA, N. L.; DIAS, M. S. Measurement of the gamma-ray probability per decay of Si-31. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 44, p. 1209-1211, 1993.
15. KOSKINAS, M. F.; SIMÕES, D.; DIAS, M. S. Measurement of the gamma-ray probability per decay of ^{42}K . *Applied Radiation and Isotopes*, v. 54, p. 443-446, 2001.
16. FONSECA, K. A.; KOSKINAS, M. F.; DIAS, M. S. Measurement of gamma-ray probability per decay of ^{186}Re . *In: 2008 IEEE NUCLEAR SCIENCE SYMPOSIUM CONFERENCE, MEDICAL IMAGING CONFERENCE; 16th ROOM TEMPERATURE SEMICONDUCTOR DETECTOR WORKSHOP*, 19–25 out. 2008, Dresden/Alemanha. *2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2008. p. 1006-1010. DOI: 10.1109/NSSMIC.2008.4774566.
17. MOREIRA, D. S. *et al.* Determination of ^{198}Au X-rays emission probabilities. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 68, p. 1566- 1570, 2010.
18. KOSKINAS, M. F. *et al.* Primary Standardization of Ga-72. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, p. 1225-1228, 2006.

19. MAIDANA, N. L. *et al.* Absolute measurement of Am-242g sources activities in Am-241 (n, gamma) cross-section determination: improvement by simulation. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A*, v. 553, p. 559-568, 2005.
20. MAIDANA, N. L. *Medida de secções de choque para reações de captura de nêutrons no ⁵⁷Co, ¹³⁷Cs e ²⁴¹Am considerando a formação de estados isoméricos.* 2000. 188 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo (USP), São Paulo, 2000.
21. YAMAZAKI, I. M. *et al.* Disintegration rate and gamma-ray emission probability per decay measurement of Cu-64. *Applied radiation and isotopes*, v. 134, p. 311-315, 2017.
22. DIAS, M. S.; MAIDANA, N. L.; KOSKINAS, M. F. Measurement of the thermal neutron capture cross section and resonance integral of Am-241. *Radiochimica Acta*, v. 89, p. 419-423, 2001.
23. KOSKINAS, M. F. *et al.* Disintegration rate measurement of ¹⁸²Ta. *Appl. Radiat. Isotopes*, v. 66, p. 934-936, 2008.
24. YAMAZAKI, I. M. *Padronização em sistema primário por coincidências 4πβ-γ e determinação das intensidades de emissão gama por decaimento dos radionuclídeos Cu- 64 e Ho-166.* 2019. 161 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo (USP), São Paulo, 2019. DOI: 10.11606/T.85.2019.tde-08032019-110934.
25. MORAIS, T. S. L.; DIAS, M. S. Study of induced activity of ¹⁶⁷Ho from different neutron capture paths. *J. Phys. Conf. Ser.*, v. 1291, p. 012024, jul. 2019.
26. KOSKINAS, M. F.; FONSECA, K. A.; DIAS, M. S. Covariance methodology applied to uncertainties in I-126 disintegration rate measurements. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A*, v. 369, p. 437-440, 1996.
27. KOSKINAS, M. F. *et al.* Covariance methodology applied to ³⁵S disintegration rate measurements by the CIEMAT/NIST method. *Radiation Physics and Chemistry (1993)*, v. 95, p. 131-133, 2014.
28. KOSKINAS, M. F. *et al.* Determination of gamma-ray emission probabilities per decay of Ga-68. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 87, p. 118-121, 2014.
29. TAKEDA, M. N.; DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Application of Monte Carlo Simulation to ¹³⁴Cs standardization by means of 4πβ-γ coincidence system. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, v. 52, n. 5, p. 1716-1720, 2005.

30. ORNL. *Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP6, RSICC Computer Code-Collection*. Oak Ridge National Laboratory, 2006.
31. DIAS, M. S.; TAKEDA, M. N.; KOSKINAS, M. F. Application of Monte Carlo simulation to the prediction of extrapolation curves in the coincidence technique. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 64, p. 1186-1192, 2006.
32. DIAS, M. S. *et al.* Improvements in the Monte Carlo Code for simulating $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ coincidence system measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, v. 12-00550R1, 2013.
33. DIAS, M. S. *et al.* SUMCOR: Cascade summing correction for volumetric sources applying MCNP6. *Applied radiation and isotopes*, v. 134, p. 205-211, 2018.