

25 - 29 SEPTEMBER, 2017

CONVENTION CENTER  
GOIÂNIA, BRAZIL

*Sharing Experiences*



## Possibilidades para Padronização do $^{152}\text{Eu}$ por cintilação líquida e por espectrometria gama

A L Ferreira Filho<sup>1,2</sup>; P A L da Cruz<sup>1</sup>; R L da Silva<sup>1</sup>; J U Delgado<sup>1</sup>; R T Lopes<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI/IRD/CNEN),

Av. Salvador Allende, 9, Barra da Tijuca, CEP 22780-160, Rio de Janeiro.

<sup>2</sup> Laboratório de Instrumentação Nuclear (LIN/PEN/COPPE/UFRJ),

Caixa Postal 68509, CEP 21945-970, Rio de Janeiro.

[alfredo@ird.gov.br](mailto:alfredo@ird.gov.br)

---

### RESUMO

O  $^{152}\text{Eu}$  possui uma meia-vida de 13,5 anos e um esquema de decaimento muito complexo com dois ramos de decaimento. Desintegra-se em  $^{152}\text{Sm}$  por captura eletrônica (72,1%) ou por emissão de pósitrons (0,027%) e em  $^{152}\text{Gd}$  por emissão beta menos (27,9%). O núcleo filho,  $^{152}\text{Sm}$ , tem 19 níveis excitados, enquanto o  $^{152}\text{Gd}$  tem 15. O decaimento direto do núcleo pai para o estado fundamental do núcleo filho não existe. O decaimento de uma fonte de  $^{152}\text{Eu}$  resulta em emissões de 4 fótons KX e 132 raios gama, o que é motivo de uma grande quantidade de verdadeiras coincidências-soma. O interesse particular neste radionuclídeo é explicado pelo seu amplo uso na calibração em energia e eficiência de espectrômetros gama com detectores semicondutores, uma vez que é ampla a gama de energia dos fótons emitidos, variando de 40 a 1769 keV. Mas, devido a esse esquema de decaimento tão complexo, a determinação da atividade do  $^{152}\text{Eu}$  apresenta muitas dificuldades. O método CIEMAT/ NIST de contagem por cintilação líquida e o método de coincidência pico-soma, uma técnica de medição absoluta que usa contagens de coincidências e espectrometria de fótons, tem sido testados no LNMRI-IRD visando padronizar soluções de  $^{152}\text{Eu}$ .

**Palavras-Chaves:** padronização absoluta, método pico-soma, equações de taxa de contagem; método CIEMAT/NIST, contagens por cintilação líquida,  $^{152}\text{Eu}$

---

## 1. INTRODUÇÃO

O LNMRI emprega e procura desenvolver diferentes métodos diretos para a padronização de soluções de radionuclídeos, todas fornecendo rastreabilidade em unidade SI. O presente trabalho discute as possibilidades de emprego de dois métodos de medição diferentes para padronizar uma solução de  $^{152}\text{Eu}$  visando futura participação do laboratório em uma comparação chave do BIPM.

O decaimento de uma fonte de  $^{152}\text{Eu}$  resulta em emissões de 4 fótons KX e 132 raios gama, o que é motivo de uma grande quantidade de coincidências-soma, mais precisamente, 4110 (Jordanov et al., 2016). Em geral, três tipos de efeitos resultam das soma-coincidências verdadeiras (*true coincidence summing*, na expressão em inglês). Se um dado fóton deposita toda sua energia no detector e outro fóton coincidente deposita apenas parte de sua energia, teremos uma "perda no pico" correspondente à energia do primeiro fóton, geralmente referido como efeito "summing-out" (de soma para fora do pico). Alternativamente, no caso do efeito "summing-in" (de soma para dentro de um novo pico), se dois raios coincidentes depositarem suas energias completas no detector, um "pico-soma" aparece no espectro. O terceiro fenômeno ocorre quando os fótons coincidentes depositam apenas parte de suas energias no detector, o que contribui apenas para o "background", não resultando acréscimos nas intensidades ou nas eficiências de pico.

O método pico-soma, precisamente, aproveita o "efeito soma", não sendo necessário calcular, como normalmente, qualquer fator de correção de coincidências, uma conhecida fonte de incerteza nas medições por espectrometria gama. Outras radiações podem estar em coincidência verdadeira com raios  $\gamma$ . Se a transição beta ou gama é acompanhada pela formação de vacâncias nos níveis atômicos através de captura de elétrons ou de conversão interna, respectivamente, também podem ocorrer efeitos de soma-coincidência com os raios-X resultantes desses processos.

O método CIEMAT/NIST baseia-se no modelo estatístico do parâmetro livre (Malonda A G 1999 Free Parameter Models in Liquid Scintillation Counting, Editorial CIEMAT/Spain) de distribuição dos fótons de cintilação e suas probabilidades de detecção. O processo de cintilação ocorre quando a solução do radionuclídeo é dissolvida em coquetel de substâncias cintiladoras e a energia cinética da partícula é transferida para as moléculas do meio, com a consequente emissão de luz. Os fótons de luz capturados nos fotocátodos das fotomultiplicadoras produzem elétrons, os quais são

multiplicados pelos dinodos com a geração de sinal eletrônico de amplitude suficiente para ser processado pela cadeia eletrônica. A eficiência de detecção para duas fotomultiplicadoras usadas pelo método CIEMAT/NIST é dado pela equação (1) obtida a partir do modelo estatístico de Poisson e da equação de Birks (2) (Birks J B 1951) para a correção da eficiência pela ocorrência no processo de extinção de luz (quenching).

$$\varepsilon = \left(1 - e^{-\frac{vm}{2}}\right)^2 \quad (1)$$

$$m(E) = \int_0^E \frac{A dE}{1 + kB dE/dx} \quad (2)$$

## 2. MÉTODO PICO-SOMA

Para o emprego do método pico-soma, o ramo de decaimento escolhido neste estudo foi o do  $^{152}\text{Sm}$  e, por indicação fornecida pela técnica da matriz (um método utilizado para derivar equações de taxa de contagem, descrevendo as soma-coincidências de raios gama e X), foram utilizadas as coincidências entre raios-X característicos  $K_\alpha$  ou  $K_\beta$  e raios gama de 121 keV,  $\gamma_{1-0}$  (Sm), sem o efeito de correlação angular que normalmente aparece apenas entre fótons emitidos em cascatas de raios gama.

De fato, ao observar as equações de taxa de contagem apresentadas por Jordanov et al., 2016 (onde  $a$ ,  $b$ ,  $\gamma$  e  $q$  são as correspondentes probabilidades de detecção ou de não detecção de fótons emitidos de um nível maior para um menor) é possível entender por que os picos acima mencionados foram escolhidos para a aplicação do método pico-soma, uma vez que sua formação não sofre influência significativa de outros.

Para o pico correspondente à energia do raio X  $k_\alpha$  do Sm (39.9 keV) a taxa de contagem depende apenas da probabilidade ( $a_{n-i}$  and  $a_{i-j}$ ) de detectar fótons  $k_\alpha$  e da probabilidade ( $q_{n-i}$  and  $q_{i-j}$ ) de não serem detectados. O mesmo para o pico correspondente ao raio X  $k_\beta$  do Sm (45.9 keV), cuja taxa de contagem depende apenas da probabilidade ( $b_{n-i}$  and  $b_{i-j}$ ) de detectar fótons  $k_\beta$  e da probabilidade ( $q_{n-i}$  and  $q_{i-j}$ ) de não detecção. Para o pico gama de 121,8 keV, a taxa de contagem depende apenas da probabilidade  $\gamma_{1-0}$  de detectar o gama e da probabilidade ( $q_{n-i}$  and  $q_{i-j}$ ) de não detecção.

Para o pico soma (161.7 keV), a taxa de contagem depende apenas das probabilidades dos fótons relacionados e da probabilidade de não detectar nenhum fóton.

Como os parâmetros nucleares e atômicos são tabelados, nas expressões de  $a_{n-i}$ ,  $b_{n-i}$  and  $q_{n-i}$  or  $a_{i-j}$ ,  $b_{i-j}$ ,  $\gamma_{i-j}$  and  $q_{i-j}$  apresentadas por Nadder et al. (2012) e por Novković et al. (2007) os únicos valores desconhecidos, além da atividade, são os das respectivas eficiências, total e de pico, que até terminam sendo cancelados na dedução da expressão utilizada pelo método pico-soma (1).

A equação (3), onde  $N_0$  é a atividade da fonte, foi obtida por Brinkman et al. (1977), e aplicado aqui para a padronização de  $^{152}\text{Eu}$ . Carles e Malonda (Carles e Malonda, 2011) deduziram minuciosamente esta equação fundamental, apresentando novas definições. Então,  $N_x$ ,  $N_{xy}$  e  $N_{xx}$  indicam os picos dos raios-X simples, os das coincidências X- $\gamma$  e os picos das coincidências X-X, respectivamente, sendo  $N_x$  as contagens sob os picos  $K_\alpha + K_\beta$ .  $N_{xy}$  as contagens nos picos  $(K_\alpha + \gamma) + (K_\beta + \gamma)$ . Como os eventos de captura eletrônica e conversão interna são seguidos pela emissão de raios-X,  $N_{xx}$  representa as contagens abaixo dos picos  $(2 K_\alpha) + (K_\alpha + K_\beta) + (2 K_\beta)$ .  $T$  é a contagem sob o espectro total e  $N_\gamma$  as contagens sob o pico  $\gamma$ ;

$$N_0 = T + \frac{N_\gamma N_x}{N_{xy}} - \frac{N_{xx} N_\gamma^2}{N_{xy}^2}$$

(3)

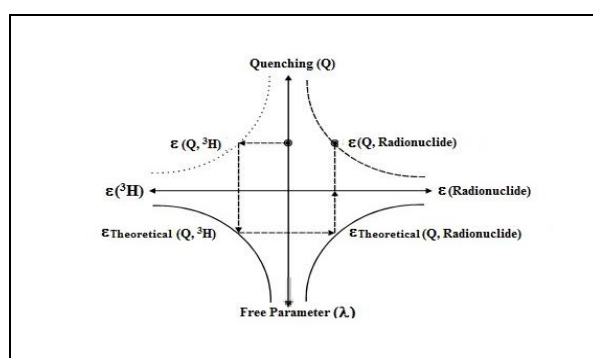
### 3. ESPECTROMETRIA POR CINTILAÇÃO LÍQUIDA

Medições por cintilação líquida podem ser realizadas em espectrômetros comerciais que operam com dois tubos fotomultiplicadores colocados em ângulo de  $180^\circ$  um em relação ao outro, em modo soma-coincidência. O método CIEMAT/NIST usa um padrão de  $^3\text{H}$  como traçador para a determinação da eficiência de contagem. Para o cálculo das curvas de eficiência teórica do  $\text{Eu-152}$  versus  $^3\text{H}$  é utilizado o código livre CN2003 (E. Günther, 2003). Para inserir os dados exigidos pelo programa é necessário definir todos os caminhos de decaimento possíveis para o  $^{152}\text{Eu}$ , quantificando suas respectivas probabilidades no curso do processo de decaimento. Cada possível caminho de decaimento é definido a partir das sucessivas transições que ocorrem em cascata desde o estado fundamental do núcleo-pai até o estado fundamental do núcleo filho. São 76 caminhos possíveis para o estado fundamental do  $^{152}\text{Gd}$ , e 289 para o do  $^{152}\text{Sm}$ , totalizando 365 cascatas. O

código também exige os dados relativos ao coquetel de cintilação usado, desde a composição química estequiométrica à sua densidade, uma vez que o código usa simulação de Monte Carlo para a interação das emissões derivadas do decaimento com os componentes do coquetel.

Os ramos de decaimento por captura eletrônica e  $\beta^-$  são levados em conta, bem como os raios- $\gamma$ . Os dados atômicos e nucleares necessários podem ser retirados do grupo de trabalho DDEP (Decay Data Evaluation Project), Vanin et al., 2004.

Um total de 8 amostras de  $^{152}\text{Eu}$  foram preparadas por meio de pesagem diferencial em 10 ml de coquetel de cintilação Ultima Gold. Essas amostras foram medidas no cintilador líquido Wallac 1414, com 10 repetições de 300 s por amostra. Um total de 8 amostras do padrão de  $^3\text{H}$  foram preparadas no mesmo coquetel de cintilação, com a adição de volumes crescentes (0, 5, 10, 15, 20, 25, 30 e 35  $\mu\text{L}$ ) de nitrometano, uma substância que produz a extinção de luz, para a avaliação da eficiência em função da extinção (quenching). As amostras foram medidas nas mesmas condições das contagens das amostras de  $^{152}\text{Eu}$ , de forma a caracterizar as condições de contagens do equipamento e estabelecer a eficiência experimental em função da extinção e correlacionar à eficiência teórica do padrão com a eficiência teórica e experimental do  $^{152}\text{Eu}$ , conforme a figura 1.



**Fig 1** Modelo CIEMAT/NIST para a padronização de radionuclídeos.

#### 4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

A Fig. 2 mostra que os resultados obtidos pelos métodos de coincidência pico-soma e CIEMAT/NIST são consistentes entre si dentro da incerteza expandida ( $k = 2$ ).

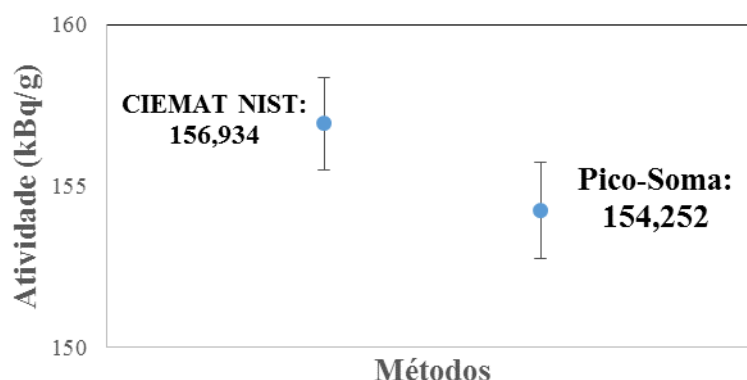


Fig. 2: Comparação dos resultados para  $k = 2$

Para maior consistência e robustez do resultado, esta solução de  $^{152}\text{Eu}$  ainda será padronizada pelos sistemas absolutos de Coincidência e Anticoincidência 4□□-□ e medida em Câmara de Ionização rastreada ao Sistema Internacional de Referência (SIR/BIPM) por meio de uma comparação-chave-CCRI(II)-K1.Eu-152 realizada em 1995.

## 5. CONCLUSÃO

Os métodos primários de medição usados para o  $^{152}\text{Eu}$  atenderam às especificidades da padronização deste radionuclídeo de decaimento complexo com suas múltiplas e variadas emissões, apresentando valores de concentração de atividade consistentes e concordantes entre si nos limites estatísticos de sua incerteza. A padronização,, em sequência, utilizando os demais métodos primários existentes no LNMRI/IRD será importante para a obtenção de maior consistência e robustez dos resultados.

## REFERÊNCIAS

1. A G Malonda, 1999, Free Parameter Models in Liquid Scintillation Counting, Editorial CIEMAT/Spain

2. Birks J B 1951 Scintillations from Organics Crystals: Especific Fluorescence and Relative Response of Different Radiations. Proc. Phys. Soc. London Sect. A64, 874
3. Brinkman, G.A., Aten, A.H.W., Veenboer, J.T., 1963. Absolute Standardization with a NaI(Tl) Crystal - I Calibration by Means of a Single Nuclide. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 14, 153–157. doi:10.1016/0020-708X(63)90110-8
4. Carles, A.G., Malonda, A.G., 2011. Informes Técnicos Ciemat 1245 Standardization of I-125 . Sum-Peak Coincidence Counting.
5. Gunther E 2003 Program CN2003: A program to calculate the LC efficiency of a nuclide vs. efficiency the tracer H-3 (CIEMAT/NIST). PTB/Germany.
6. Jordanov, D., Nadderđ, L., Puzović, J., Rosić, M., Kokunošeski, M., 2016. The application of the new matrix method for calculating coincidence summing effects in the case of radionuclide with the more complex decay scheme -  $^{152}\text{Eu}$ . Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. 836, 22–29. doi:10.1016/j.nima.2016.08.008
7. Nadderđ, L.J., Jordanov, D.J., Davidović, M.D., 2012. A new matrix method for calculating coincidence summing effects for gamma spectroscopy. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. 662, 21–25. doi:10.1016/j.nima.2011.10.002
8. Novković, D., Durašević, M., Kandić, A., Vukanac, I., Šešlak, B., Milošević, Z., 2016. Coincidence summing corrections for point and volume  $^{152}\text{Eu}$  sources. Appl. Radiat. Isot. 107, 138–144. doi:10.1016/j.apradiso.2015.10.015
9. Novković, D., Kandić, A., Durašević, M., Vukanac, I., Milošević, Z., Nadderđ, L., 2007. Coincidence summing of X- and  $\gamma$ -rays in  $\gamma$ -ray spectrometry. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. 578, 207–217. doi:10.1016/j.nima.2007.05.199
10. Vanin, V.R., Castro, R.M. de, Browne, E., 2004.  $^{152}\text{Eu}$ . Table of Radionuclides 89.