

## Padronização Absoluta do $^{54}\text{Mn}$ pelo método pico-soma utilizando a espectrometria gama com detectores de HPGe

**Miriam Tainá Ferreira de Araújo<sup>1</sup>, Maria Cândida Moreira de Almeida<sup>2</sup>, José Ubiratan Delgado<sup>3</sup>, Ronaldo Lins da Silva<sup>3</sup>, Roberto Poledna<sup>3</sup>**

<sup>1</sup> Instituto Federal do Rio de Janeiro - IFRJ; <sup>2</sup> Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN

<sup>3</sup> Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD

E-mail: miriam.araujo@ifrj.edu.br

**Resumo:** As padronizações absolutas de fontes radionuclídicas produzidas pelo LNMRI fazem parte de uma rotina estabelecida. O método pico-soma tem sido aplicado em frequentes trabalhos do LNMRI para obter o valor absoluto de atividade uma vez que pode ser empregado em emissores que decaem por captura eletrônica e emissores  $\beta^+$  que emitem um gama subsequente. O  $^{54}\text{Mn}$  é um radionuclídeo que decai por captura eletrônica possibilitando a aplicação do método de maneira adequada. Para esta padronização foram obtidos valores de incertezas abaixo de 2%. Além do método absoluto foi utilizado um método relativo, curva de eficiência, em critério comparativo.

**Palavras-chave:** Método Pico-soma, Padronização Absoluta,  $^{54}\text{Mn}$ , Espectrometria Gama, HPGe.

**Abstract:** Absolute standardizations do part of the routine for calibrating radioisotopic sources produced by LNMRI. The peak-sum method has been applied in frequent LNMRI studies to obtain the absolute value of activity since it is a method that can be used in emitters that decay by electronic capture and  $\beta^+$  emitters that emit a subsequent range.  $^{54}\text{Mn}$  is a radionuclide that decays by electronic capture, making it possible to apply the method properly. For this standardization, uncertainty values around 2% were obtained. In addition to the absolute method, a relative method, efficiency curve, in comparative criteria was used.

**Keywords:** Sum Peak-method, Absolute Standardization,  $^{54}\text{Mn}$ , Gamma Spectrometry, HPGe.

### 1. INTRODUÇÃO

Laboratórios de calibração que trabalham com a padronização de grandezas radiológicas estão sujeitos à um grande escopo quanto a possibilidade de radioisótopos que podem ser fornecidos aos usuários. Essa ampla gama de radionuclídeos advém, sobretudo, das várias áreas que necessitam fazer uso da

radiação em alguma aplicação ou processo tais como, agricultura, medicina física, biologia, química, dentre tantas outras.

Nesse sentido, o LNMRI, desde 1989, é designado pelo INMETRO para atuar na área de radiações ionizantes. Considerando a missão do LNMRI que objetiva desenvolver, manter e disseminar os padrões nacionais para radiações ionizantes e radioatividade, ele atua sobretudo no fornecimento ao usuário, de fontes padronizadas, que são produzidas através de sistemas de medição que possuem confiabilidade metrológica, ou seja, em circunstâncias de rotina, conseguem manter seu funcionamento sob condições específicas e adequadas (MENDES E ROSÁRIO, 2020).

Além de promover a confiabilidade, o LNMRI fornece o padrão radionuclídico acompanhado do certificado de calibração que relaciona os valores fornecidos ao cliente a uma referência, através de uma cadeia ininterrupta e documentada de calibrações rastreadas ao BIPM. Esta cadeia fornece a rastreabilidade necessária, transferindo às medições a exatidão advinda dos padrões e instrumentos calibrados, possibilitando assim uma estimativa adequada de incerteza de medição (MENDES E ROSÁRIO, 2020).

Ao longo dos últimos anos o LNMRI que, através da espectrometria gama utilizando o método pico-soma, tem conseguido fornecer uma diversa gama de padrões para seus usuários, tais como:  $^{121}\text{Te}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{123}\text{I}$ , dentre muitos outros (ARAÚJO, M. T. F., 2016). O propósito na padronização absoluta do  $^{54}\text{Mn}$  se faz a partir da aplicabilidade do método pico-soma e também da oportunidade de ter mais um radioisótopo compondo o conjunto de padrões de trabalho do laboratório. Outra vantagem é que, este radionuclídeo ajuda a compor uma boa curva de eficiência promovendo o aumento do número de pontos energéticos que compõem a mesma (OLIVEIRA, E. M., 2012).

### ***1.1 O radioisótopo $^{54}\text{Mn}$***

O  $^{54}\text{Mn}$  é um radioisótopo que decai por captura eletrônica para o nível intermediário de 834,85 keV com 99,97% de probabilidade de emissão, decaindo assim para o  $^{54}\text{Cr}$ . Possui uma meia vida de 319,19 dias, cujo uso em laboratório facilita por exemplo, a verificação de estabilidade dos sistemas de espectrometria gama de HPGe e também na composição de curvas de eficiência destes sistemas (LARA, 2020). O propósito da padronização para este radioisótopo feita pelo LNMRI se dá no sentido de suas energias serem estabelecidas numa faixa que é bastante útil ao laboratório para as finalidades descritas anteriormente. Literaturas internacionais fazem uso das propriedades do  $^{54}\text{Mn}$  para medição de meia-vida, dados de decaimento e padronização absoluta pelo método absoluto de coincidência  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  (SILVA, M. A. L, 2006).

### ***1.2 O método Pico-soma***

Devido seu esquema de decaimento simplificado e do fornecimento discreto da energia de 834 keV, o método pico-soma pode ser adequadamente aplicado ao  $^{54}\text{Mn}$  considerando a soma do raio X de 5keV com o gama de 834,55 keV, permitindo assim a determinação da grandeza atividade. A padronização absoluta pelo método pico-soma se faz necessária pois permite a determinação de parâmetros sem a

requisição de uma eletrônica sofisticada e elaborada (BRINKMAN, G. A., 1963). Outra vantagem na aplicação do método é que se pode obter o valor de atividade através da determinação do número de contagens dos picos energéticos fornecidos pelo software de aquisição de dados, o que torna todo o processo de padronização mais fácil e chances de obter alta precisão, uma vez que permite obter valores de incertezas mais baixas (BRINKMAN, G. A., 1963).

### 1.3 O método curva de eficiência

Em critério de comparação, costuma-se fazer a verificação do valor de atividade absoluto, obtido pelo método pico-soma comparando os valores com a atividade fornecida através do emprego da curva de eficiência. A curva de eficiência é composta por diversos pontos de energia fornecidos por padrões do laboratório, que são predominantemente emissores gama (DIAS M. S., 1995). Os valores energéticos por ela fornecidos são compatíveis com o que é aplicado neste trabalho.

## 2. METODOLOGIA

### 2.1. Aplicação do Método Pico-soma

Para o  $^{54}\text{Mn}$ , a aplicação do método é feita de modo simples uma vez que há apenas um raio X de 5 keV e um raio gama de 834,55 keV cuja soma, 839 keV, é facilmente identificável no espectro. A atividade foi obtida pela fórmula clássica dada por Brinkman et al. (1963) como descrito em (1):

$$N_o = N_T + \frac{N_X N_Y}{N_{X_Y}} \quad (1)$$

Onde,  $N_T$  são as contagens sob o espectro total,  $N_X$  é a contagem de raios X ( $K\alpha + K\beta$ ),  $N_Y$  corresponde ao pico de contagem em 384 keV e  $N_{X_Y}$  é a contagem referente ao pico-soma.

### 2.2. Método relativo Curva de Eficiência

A curva de eficiência foi obtida usando vários padrões radionuclídicos confeccionados em geometria puntiforme como:  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  totalizando 59 pontos de energia e o gráfico pode ser observado na figura 1.

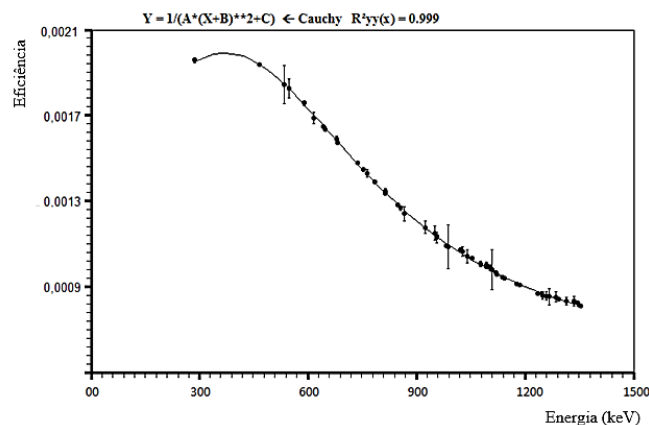


Figura 1: Curva de eficiência obtida (linear – long scale) para o Sistema de espectrometria usando padrões puntiformes:  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ .

O sistema de espectrometria que utiliza detectores de HPGe foi calibrado em eficiência através do uso dos padrões puntiformes acima referenciados. A faixa de energia foi estabelecida originalmente entre 48 keV e 1427 keV. Em seguida, foi feito um corte considerando apenas as energias acima de 100 keV uma vez que a região de baixa energia não foi necessária para efeito da calibração.

## 2.2. Probabilidade de emissão gama

Para associar os principais picos do espectro ao radionuclídeo, é necessário obter a relação canal-energia de um espectrômetro. Em seguida, é determinada a curva de eficiência de absorção total, em função da energia e, a atividade do radionuclídeo pode ser calculada a partir da região de interesse. A expressão que representa uma área de atividade é dada por (2):

$$\frac{CPS_{\text{corrigido}}}{P_{\gamma}\epsilon_{\gamma}} \quad (2)$$

Onde  $CPS_{\text{corrigido}}$  é a taxa de contagem do fotopico;  $\epsilon_{\gamma}$  é a eficiência de fotopico para energia específica; e  $P_{\gamma}$  é a probabilidade de emissão para energia específica. No entanto, como a atividade da fonte foi obtida diretamente pelo método pico-soma, temos que para o cálculo de  $P_{\gamma}$  foi selecionado o intervalo de 834,8 keV do  $^{54}\text{Mn}$ . Por meio de (3), levando em consideração as correções como decaimento, background e posicionamento teremos que:

$$P_{\gamma} = \frac{CPS_{\text{corrigido}}}{\epsilon_{\gamma}A} \quad (3)$$

## 3. PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

### 3.1. Preparação de Fontes e medições

As fontes puntiformes foram produzidas tendo como data de referência: 09/05/2016. As mesmas foram fornecidas pelo serviço de produção de fontes radionuclídicas do LNMRI, depositando-se gotas da solução do radionuclídeo com auxílio de um picnômetro, em um filme de poliestireno, com espessura de 0,05 mm, fixado em um anel de acrílico. O anel tem diâmetro externo de 25 mm, diâmetro interno de 4 mm e espessura de 1 mm. Depois de secas, as fontes foram cobertas com o mesmo filme de poliestireno (OLIVEIRA, E, M., 2012).

Os sistemas de espectrometria usados consistem em detectores planares, coaxiais e do tipo poço com eletrônica associada. A medição das fontes foi realizada na posição denotada por “p4” a uma distância de 20 cm do topo do detector coaxial e o valor da atividade obtido foi comparado com o método pico-soma. O tempo de contagem de cada amostra de  $^{54}\text{Mn}$  variou entre 6 h de 24 h e o tempo morto foi

inferior a 4% para todas as medições. O controle de impurezas radionuclídicas também foi realizado e não foi verificada a presença de outros radioisótopos nas amostras analisadas.

#### 4. RESULTADOS

Os resultados experimentais obtidos para a grandeza atividade do  $^{54}\text{Mn}$  são apresentados na tabela 1 acompanhados de suas respectivas incertezas tanto pelo método da curva de eficiência, utilizando a posição “p4” (20 cm), quanto pelo método pico-soma, em “p0” Posição (0 cm).

**Tabela 1.** Resultado da Atividade para os métodos curva de eficiência e pico soma para o  $^{54}\text{Mn}$

Amostra	Curva de Eficiência (p4)			Método pico-soma (p0)		
	Atividade (kBq)	$u_A(\%)$	$u_B(\%)$	Atividade (kBq)	$u_A(\%)$	$u_B(\%)$
<b>17S16</b>	1,530	0,32	0,6	1,576	0,8	0,1
<b>18S16</b>	1,876	0,32	0,6	1,985	0,8	0,1
<b>19S16</b>	2,181	0,21	0,6	2,319	0,6	0,1
<b>20S16</b>	1,757	0,33	0,6	1,836	0,3	0,1
<b>21S16</b>	1,753	0,19	0,6	1,817	0,7	0,1

Posições: p4 = 20 cm (distância fonte-detector); p0 = 0 cm (topo do detector)

Os valores obtidos em ambos os métodos possuem uma diferença a se considerar em se tratando de incertezas do tipo A. Entende-se que a alta diferença decorra da estatística de medição associada a cada método sabendo que, o tempo de aquisição de contagens das amostras para as quais o método pico-soma foi aplicado acabou por sofrer alterações resultando em baixo tempo de contagem. Apesar da diferença, foi possível padronizar absolutamente o  $^{54}\text{Mn}$  pelo método pico-soma, ainda que, em termos de incerteza, o método absoluto tenha tido um desempenho pior do que quando comparado ao método relativo dado pela curva de eficiência. As tabelas 2 e 3 nos mostram os valores de incertezas obtidos para cada método.

**Tabela 2.** Balanço de Incertezas para o  $^{54}\text{Mn}$  pelo método curva de eficiência

Isótopo	$^{54}\text{Mn}$	
	A	B
<b>Incerteza ( <math>\mu</math> ) tipo</b>		
<b>Medição estatística</b>	0,25	
<b>Curva de eficiência</b>	-	0,56
<b>Pesagem-geometria</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	< 0,1
<b>Tempo vivo</b>	-	< 0,1

<b>Probabilidade de emissão gama (<math>P_\gamma</math>)</b>	-	0,05
<b>Incerteza padrão relativa <math>u</math> (%)</b>	0,65	
<b>Incerteza relativa expandida <math>U</math> (%) (<math>k=2</math>)</b>	1,3	

**Tabela 3.** Balanço de Incertezas para o  $^{54}\text{Mn}$  pelo método absoluto pico-soma

<b>Componentes de Incerteza</b>	$^{54}\text{Mn}$	
	A	B
<b>Incerteza tipo</b>		
<b>Estatística de Medição</b>	0,8	
<b>Efeito de empilhamento</b>	-	-
<b>Pesagem</b>	-	0,20
<b>Meia-vida</b>	-	< 0,1
<b>Decaimento</b>	-	< 0,1
<b>Tempo vivo</b>	-	< 0,1
<b>Background</b>	-	-
<b>Fator de diluição</b>	-	-
<b>Incerteza relativa <math>u</math> (%)</b>	0,82	
<b>Incerteza expandida <math>U</math> (%) (<math>k=2</math>)</b>	1,6	

A Tabela 4 mostra os resultados para as probabilidades de emissão gama comparados aos valores do *Laboratoire National Henry Becquerel* (Nucléide -LARA / LNHB). Em geral, os valores para as probabilidades de emissão avaliadas foram consistentes e os valores de incerteza obtidos estão ligeiramente abaixo dos valores publicados para ambos os radionuclídeos. A calibração adequada do sistema de espectrometria gama, bem como a implementação relativamente bem-sucedida do método pico-soma, tornou possível obter os valores das probabilidades de emissão com incerteza associada até 0,04% para 834 keV. Os valores de  $P_\gamma$  obtidos para as energias são compatíveis com as publicações.

**Tabela 4.** Probabilidade de emissão gama e sua Incerteza relativa para a energia de 834 keV do  $^{54}\text{Mn}$  pelo método curva de eficiência ( $k=1$ )

<b>Energia (keV)</b>	<b>LARA/LNHB</b>	<b>Este trabalho</b>
834	99,98 (5)	99,96 (4)

## 5. CONCLUSÕES

Os valores de atividade obtidos pela curva de eficiência foram satisfatórios e confiáveis o suficiente para proceder a comparação junto ao método pico-soma. Devido à dificuldade encontrada na aquisição de contagens das amostras de  $^{54}\text{Mn}$  destinadas a aplicação do método absoluto, houve um acréscimo nos valores de incerteza do tipo A, que levou a uma moderada discrepância em relação aos valores obtidos através da curva de eficiência. Contudo, o método pico-soma possibilitou a padronização absoluta do  $^{54}\text{Mn}$ , mantendo sua incerteza expandida abaixo de 2%, apesar das dificuldades apresentadas. Por outro lado, o método relativo dado pela curva de eficiência produziu valores de incerteza em torno de 1,3%, também abaixo de 2%, o que agrega valor ao emprego do método comparativo, contribuindo para a confiabilidade dos resultados dado que, neste caso, o método absoluto tenha apresentado reflexos das limitações decorrentes da rotina de trabalho.

## 6. REFERÊNCIAS

- ARAÚJO, M. T. F. et al. Absolute Standardization of the impurity  $^{121}\text{Te}$  associated to the production of the radiopharmaceutical  $^{123}\text{I}$ . **Applied Radiation and Isotopes**, v. 109, p. 389-392, 2016.
- BRINKMAN, G. A. et al. Absolute Standardization with a NaI (TI) Crystal. **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**, v. 14, p. 153-157, 1963.
- BRINKMAN, G. A. et al. Sum-peak Calibration of  $^{123}\text{I}$ . **International Journal of Applied Radiation and Isotopes**, v. 28, p. 271-275, 1977.
- DIAS, M. S.; KOSKINAS, M. F. Accidental Summing Corrections in  $^{125}\text{I}$  Activity Determination by the Sum-peak Method. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 46, p. 945-948, 1977.
- KIM, I.; PARK, C. S.; CHOI, H. D. Absolute calibration of  $^{60}\text{Co}$  by using sum-peak method and an HPGe detector. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 58, p. 227-233, 2003.
- Laboratoire National Henry Becquerel, LNHB/CEA, 2004. Table of Radionuclides. Disponível em <[www.nucleide.org/DDEP\\_WG/123\\_tables](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/123_tables)> Acesso em: 18 mar 2018.
- MENDES, A.; ROSÁRIO, P. P. N. **Metrologia e Incerteza de Medição: Conceitos e Aplicações**. Rio de Janeiro: LTC, 2020.
- OLIVEIRA, E. M. et al. Standardization of  $^{65}\text{Zn}$  by sum-peak method. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 70, p. 2087-2090, 2012.
- SILVA, M. A. L., et al. Standardization and decay data determination of  $^{125}\text{I}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{203}\text{Hg}$ . **Applied Radiation and Isotopes**, v. 64, p. 1440-1445, 2006.