

Avaliação crítica dos resultados obtidos pelo Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos do IRD nas comparações chaves internacionais de medição de atividade de soluções radioativas

A Iwahara, L Tauhata, C J da Silva

Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes/Instituto de Radioproteção e Dosimetria (LNMRI/IRD), Av. Salvador Allende, s/no – Barra da Tijuca/Rio de Janeiro CEP 22783-127

E-mail: iwahara@ird.gov.br

Resumo: O Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos (LMR) do LNMRI/IRD vem participando, desde 1984, das comparações chaves internacionais de medição de atividade de soluções radioativas organizadas pelo BIPM e Organizações Regionais de Metrologia como EURAMET e APMP. A grandeza medida é a atividade de uma solução radioativa, em becquerel (Bq), contendo o radionuclídeo em questão, e os métodos de medição utilizados são o coincidência/anticoincidência $4\pi\beta\gamma$, coincidência pico-soma e cintilação líquida. Neste trabalho são apresentados um resumo dos métodos utilizados e uma análise de desempenho dos resultados obtidos.

Palavras-chave: atividade, comparação-chave, grau de equivalência.

Abstract: The Radionuclide Metrology Laboratory (LMR) of LNMRI/IRD has been participating since 1984, in international key-comparisons of activity measurement of radioactive sources organized by BIPM and the Regional Metrology Organizations as EURAMET and APMP. The measured quantity is the activity of a radioactive solution, in becquerel (Bq), containing the radionuclide involved and the of measurement methods used are $4\pi\beta\gamma$ coincidence/anticoincidence, coincidence sum-peak and liquid scintillation. In this paper a summary of the methods used and a performance analysis of the results obtained are presented.

Keywords: activity, key-comparison, degree of equivalence.

1. INTRODUÇÃO

Como laboratório designado pelo Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial (INMETRO) para desenvolver, manter e disseminar padrões de radioatividade no campo da metrologia das radiações ionizantes no Brasil, o Laboratório de Metrologia de Radionuclídeos/Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes/Instituto de Radioproteção e Dosimetria (LMR/LNMRI/IRD) participa, desde

1984, de comparações internacionais de medição de atividade de fontes e soluções radioativas organizadas pelo BIPM (Bureau International des Poids et Mesures), e organizações regionais de metrologia como EURAMET (European Association of National Metrology Laboratories) e APMP (Asia-Pacific Metrology Programme). Visando a consistência das medições de atividade de fontes radioativas, em nível internacional, o BIPM iniciou, em 1976, um programa denominado Sistema Internacional de Referência/ SIR (RITZ, 1983; RATEL, 2007) que permite a

1º Congresso Brasileiro de Metrologia das Radiações Ionizantes, Rio de Janeiro/RJ, novembro de 2014

verificação, através de comparações, da atividade de soluções radioativas emissores de radiação gama preparadas e certificadas por Institutos Nacionais de Metrologia (INMs). Para avaliar o desempenho foi introduzido o conceito de grau de equivalência que caracteriza os padrões nacionais para a radiação ionizante, em nível internacional, dando início a um sistema internacional de reconhecimento de padrões, certificações e medições. Assim, num encontro em Paris, em 1999, os diretores dos INMs de 38 países (incluindo Brasil) e representantes de duas organizações internacionais assinaram um Acordo de Reconhecimento Mútuo, patrocinada pela Conferencia Internacional de Pesos e Medidas (CIPM-MRA, sigla em inglês) para padrões de medições nacionais e para certificados de calibração e medição emitidos pelos INMs. No campo da metrologia de radionuclídeos um grande número de comparações internacionais foi e vem sendo realizado pelo BIPM e seus resultados analisados e disponibilizados num banco de dados denominado BIPM Key-Comparison Data Base (KCDB), Appendix B, do CIPM-MRA. Esse banco de dados é acessível no endereço www.bipm.org/KCDB e apresenta os graus de equivalência para os laboratórios de metrologia do mundo inteiro. No que se refere à grandeza atividade, cuja unidade é becquerel (Bq), o LMR/LNMRI registra 29 resultados (o BIPM ainda não divulgou os relatórios das comparações de $^{68}\text{Ga}+^{68}\text{Ge}$, ^{99}Tc e ^{89}Sr).

2. MÉTODOS DE PADRONIZAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS

2.1. Método de coincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ usando técnica de extrapolação de uma curva de eficiência

O sistema de medição é constituído de um contador proporcional de fluxo gasoso para detecção de raios beta, elétrons Auger e raios-X característicos e de um cintilador de NaI(Tl) para detecção das radiações gama. Existe uma extensa gama de trabalhos publicados na literatura para a descrição do método. O fundamento desse método consiste em obter uma função $N_\beta N_\gamma / N_c$ versus $(1 - N_c / N_\gamma) / (N_c / N_\gamma)$ onde N_β , N_γ e N_c são, respectivamente, as taxas de contagem da fonte

obtidas no contador proporcional, no cintilador de NaI(Tl) e as coincidências entre esses dois eventos. O valor extrapolado de $N_\beta N_\gamma / N_c$ fornece a atividade correta quando $N_c / N_\gamma = 1$.

2.2. Método de anticoincidência $4\pi\beta\text{-}\gamma$ usando técnica de extrapolação de uma curva de eficiência

O método de anticoincidência utilizado no LMR/LNMRI e originalmente desenvolvido por Bryant (BRYANT, 1962) leva em consideração o conceito de tempo vivo na correção de tempo morto e um circuito baseando no tempo morto estendível (BOUCHARD, 2002). Neste método, eventos gama não correlacionados são registrados em vez daqueles correlacionados com eventos beta. O sistema montado no LMR/LNMRI é constituído de um frasco de vidro contendo a fonte radioativa dissolvida num coquetel de cintilação. As cintilações de luz produzidas por radiações beta menos ou pósitrons e elétrons Auger ou raios-X característicos, provenientes de eventos de captura eletrônica, são coletadas por duas fotomultiplicadoras colocadas num ângulo de 180° em relação ao frasco. Os raios gama são detectados num cintilador de NaI(Tl) e um terceiro canal denominado comum é usado para contar os raios gama não correlacionados para calcular a taxa de contagem em coincidência real. As medições de anticoincidência podem ser expressas pela função $N = \frac{C_\beta C_\gamma}{C_\gamma - C_\gamma^c}$ em função de $\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta}$ onde C_β , C_γ e C_γ^c são as taxas de contagem beta, gama e não correlacionados, respectivamente e $\varepsilon_\beta = \frac{C_\gamma - C_\gamma^c}{C_\gamma}$. A intersecção de N para $\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} = 0$, em primeira aproximação, fornece a atividade N_0 da fonte radioativa.

2.3 Método de coincidência pico-soma

O método de coincidência pico-soma foi originalmente desenvolvido por Brinkman, Aten Jr e Veenboer, 1963. O método utiliza um único detector que pode ser um cristal de NaI(Tl) ou um germânio de alta resolução. O radionuclídeo a ser calibrado deve emitir duas ou mais radiações

eletromagnéticas simultaneamente no seu decaimento. A equação fundamental do método é dada pela expressão $N_0 = N_T + \left(\frac{N_1 N_2}{N_{12}}\right)$ onde N_0 é a atividade da fonte, N_T é a taxa de contagem total do espectro de fóton obtido, N_1 e N_2 são as taxas de contagens nos fotopicos 1 e 2 e N_{12} é a taxa de contagem no pico-soma que é o resultado da interação simultânea das duas radiações 1 e 2 no detector.

2.4 Método de cintilação líquida TDCR (Triple do Double Coincidence Ratio, em inglês)

O método TDCR foi inicialmente desenvolvido por Broda, Pochwalski e Radoszewski, 1988 e Cassete e Vatin, 1992. O sistema de medição do LMR/LNMRI consiste de três fotomultiplicadoras dispostas a 120° uma em relação às outras que detectam a luz emitida no frasco de vidro contendo a solução radioativa dissolvida no líquido cintilador e um módulo eletrônico denominado MAC3 desenvolvido por Bouchard, no LNHB (Laboratoire National Henri Becquerel, da França) (BOUCHARD e CASSETTE, 2000). O princípio do método está descrito em Lima da Cruz, 2013.

3. AVALIAÇÃO DE DESEMPENHO

No campo da metrologia de radionuclídeos a grandeza medida nas comparações chaves internacionais organizadas pelo BIPM é a atividade, em Bq, de soluções radioativas distribuídas aos INMs participantes. O resultado da comparação, chamado de valor de referência da comparação chave (KCRV, sigla em inglês) é calculado como a média ponderada ou aritmética de todos os resultados reportados pelos participantes eliminando os *outliers* evidentes. Para avaliar a consistência do resultado de um participante em relação ao KCRV foi estabelecido um parâmetro denominado grau de equivalência, dado pela diferença $D_i = (X_i - X_R)$, onde X_i é o valor da atividade do participante e X_R é o valor de referência da atividade KCRV, ambos em MBq (WOODS, REHER e RATEL, 2000). A incerteza expandida U_i ($k=2$) da diferença D_i , conhecida como incerteza

equivalente, é calculada segundo (1) (Ratel, 2005):

$$U_i = 2 \left[\left(1 - \frac{2}{n}\right) u_i^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right) \sum_i^n u_i^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

onde u_i é a incerteza do participante e n o número de participantes. Para analisar o desempenho do LMR/LNMRI nas comparações, neste trabalho, foi adotado o parâmetro denominado Desvio Normalizado E (BEISSNER, 2002) expresso por (2)

$$E = \frac{D}{U} \quad (2)$$

O limite de consistência para o desempenho ser aceitável será $|E| < 1$.

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na tabela 1 são apresentados os resultados do desempenho da participação do LMR/LNMRI nas comparações chaves desde 1984 até 2013. Os valores de D e U foram obtidos do KCDB do BIPM para cada comparação. Alguns desses resultados foram obtidos a partir dos *drafts* A ou B ou de resultados preliminares reportados pelo BIPM internamente. De uma maneira geral o desempenho do LMR/LNMRI pode ser considerado muito bom uma vez que das 31 participações (três ainda sem resultados reportados pelo BIPM) apenas 5 ficaram fora dos limites aceitáveis do desvio normalizado E . Apesar de não satisfazer o critério de aceitação do desvio normalizado E os resultados desses cinco radionuclídeos não são considerados *outliers* e constam no banco de dados do KCDB/BIPM e contribuíram para a obtenção do valor de referência KCRV.

Tabela 1. Resultados de desempenho do LMR/LNMRI nas comparações chaves de medição de atividade de fontes radioativas. Desempenho é considerado aceitável se $E < 1$.

Nuclídeo	Ano da realização	Grau de equivalência (MBq)	Incerteza (MBq)	Desvio normalizado E
Co-60	1984	0,014	0,015	0,93

Nuclídeo	Ano da realização	Grau de equivalência (MBq)	Incerteza (MBq)	Desvio normalizado E
Cd-109	1986	10	52	0,19
Cs-134	1987	-0,098	0,050	1,96
I-125	1988	-0,0007	0,006	0,12
Co-57	1991	0,6	2,0	0,30
Se-75	1992	-0,50	0,58	0,86
Ba-133	1995	0,408	0,28	1,46
Ce-139	1997	-0,04	1,00	-0,04
Yb-169	1997	0,6	1,6	0,375
I-131	1999	0,32	0,37	0,865
Eu-152	2000	-0,159	0,29	0,548
Co-58	2000	0,50	0,25	2,000
Y-88	2000	0,026	0,067	0,388
Ho-166m	2000	0,24	0,11	2,182
Sr-89	2001	-	-	(e)
Ir-192	2002	-0,09	0,12	0,750
Mn-54	2002	0,00084	0,00219	0,383 ^(a)
Zn-65	2003	0,000496	0,001296	0,383 ^(b)
Tl-204	2003	0,00181	-0,00259	0,699 ^(c)
P-32	2003	0,00019	-0,000344	0,552 ^(c)
I-125	2004	0,00093	-0,002172	0,428 ^(c)
Am-241	2006	20	10	2,000
Fe-55	2006	0,01247	0,025463	0,490 ^(a)
I-131	2006	-0,25	1,85	0,135
Cr-51	2006	-1,3	4,8	0,270 ^(d)
Sb-124	2008	0,0031	0,0114	0,272
Co-57	2008	0,6	2,0	0,300
Lu-177	2009	-2,1	8	0,263 ^(c)
Tc-99	2012	-	-	(e)
Tc-99m	2013	1,5	3,4	0,441
(Ga+Ge)-68	2013	-	-	(e)

(a)Draft A, (b)Draft B, (c)Resultado preliminar, (d)Estudo piloto, (e) Sem relatório.

5. CONCLUSÕES

Os resultados obtidos pelo LNMRI até a presente data foram bastante satisfatórios uma vez que apenas 5 deles não tiveram um desempenho satisfatório segundo o critério de desvio normalizado *E*, mas contribuem para a obtenção dos respectivos KCRVs. Dessa maneira pode-se dizer que o LMR/LNMRI está bem situado tecnicamente perante a comunidade internacional de metrologia de radionuclídeos. As comparações

chaves bem como as medições do SIR servem para dar uma confiabilidade e sustentabilidade técnica aos requisitos básicos do Acordo de Reconhecimento Mútuo do Comitê Internacional de Pesos e Medidas (MRA-CIPM).

7. REFERÊNCIAS

BEISSNER K. On a measure of consistency in comparison measurements. *Metrologia*. 39, p. 59-63, 2002.

BOUCHARD J; CASSETTE P. MAC3: an electronic module for the processing of pulses delivered by a three photomultiplier liquid scintillation counting system. *Appl. Radiat. Isot.* 52, p. 669-672, 2000.

BOUCHARD J. A new set of electronic modules (NIM standard) for a coincidence system using pulse mixing method. *Appl. Radiat. Isot.* 56, p. 269-273, 2002.

BRODA R, POCHWALSKI K, RADOSZEWSKI T. Standardization of pure beta emitters by liquid scintillation counting. *Appl. Radiat. Isot.* 39-2, p. 165-172, 1988.

BRINKMAN GA, ATEN Jr HW, VEENBOER JT. Absolute standardization with NaI(Tl) crystal-I. *Int. Appl. Radiat. Isot.* 14, p. 153-157, 1963.

BRYANT J. Anticoincidence counting method for standardizing radioactive materials. *Appl. Radiat. Isot.* 13, p. 273-276, 1962.

CASSETTE P, VATIN R. Experimental evaluation of TDCR models for the 3 PM Liquid Scintillation Counter, *Nucl. Instr. Meth.* A312, p. 95-99, 1992.

CIPM MRA: Mutual recognition of national measurement standard and of calibration and measurement certificates issued by National Metrology Institutes. International Committee for Weights and Measures, 1999. 45 pp. <http://www.bipm.org/pdf/mra.pdf>.

CRUZ PAL. Padronização Absoluta de Radionuclídeos pelo método TDCR de Cintilação Líquida, Paulo Alberto Lima da Cruz, Tese de Doutorado, COPPE/UFRJ, 2013.

ISO: Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, Geneva, International Organization for Standardization, 1993.

MICHOTTE et al. Activity measurements of the radionuclide ^{99m}Tc for the CNEA, Argentina and the LNMRI/IRD, Brazil in the ongoing comparison BIPM.RI(II)-K4.Tc-99m. Metrologia 50, Tech. Suppl. 06023, 2013.

RATEL G. Evaluation of the uncertainty of the degree of equivalence. Metrologia 42. p. 140-144, 2005.

RATEL G. The Système International de Référence and its application in key comparisons. Metrologia 44(4). S7-S16, 2007.

RITZ A. The international reference system for activity measurements of γ -ray emitting nuclides. Int. J. Appl. Radiat. Isot. 34, 1047-1050, 1983.

WOODS MJ, REHER DF, RATEL G. Equivalence in radionuclide metrology. Appl. Radiat. Isot. 52, p. 313-318, 2000.