

# PAŃSTWOWY WZORZEC JEDNOSTKI MIARY AKTYWNOŚCI PROMIENIOTWÓRCZEJ RADIONUKLIDÓW

Państwowy wzorzec jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów (JMAPR) stanowi zespół trzech układów pomiarowych, w których stosuje się 12 bezwzględnych metod pomiarowych, a obiektami pomiaru są dwa rodzaje źródeł. Powyższe metody i źródła pomiarowe stanowią integralną część wzorca państwowego znajdującego się na wyposażeniu Laboratorium Wzorców Radioaktywności (LWR) Ośrodka Radioizotopów POLATOM wchodzącego w skład Instytutu Energii Atomowej w Świerku.



Układy detekcyjne i elektroniczne państwowego wzorca JMAPR

Podstawą zastosowanych metod pomiarowych, za wyjątkiem jednej, jest tzw. technika ciekłych scyntylatorów. Zasadniczym jej elementem jest zmieszanie roztworu promieniotwórczego z mieszaniną scyntylacyjną (tzw. koktajlem scyntylacyjnym) i rejestracja powstających scyntylacji w układzie detekcyjnym z fotopowielaczami. Zaletą tej techniki jest łatwość stosowania i fakt, iż nie występuje problem samoabsorpcji w źródłach pomiarowych, a istotna jest jedynie ich jednorodność i stabilność. Typowa mieszanina scyntylacyjna składa się z rozpuszczalnika (diizopropylonaftalen DIN lub ksylen), scyntylatora (2,5-difenyloksazol PPO) oraz tzw. przesuwacza widma (bis-MSB). Źródła pomiarowe są przygotowywane w zakręcanych naczynkach pomiarowych szklanych (o obniżonej zawartości potasu) lub polietylenowych.



Naczynka pomiarowe wykorzystywane w układach państwowego wzorca JMAPR

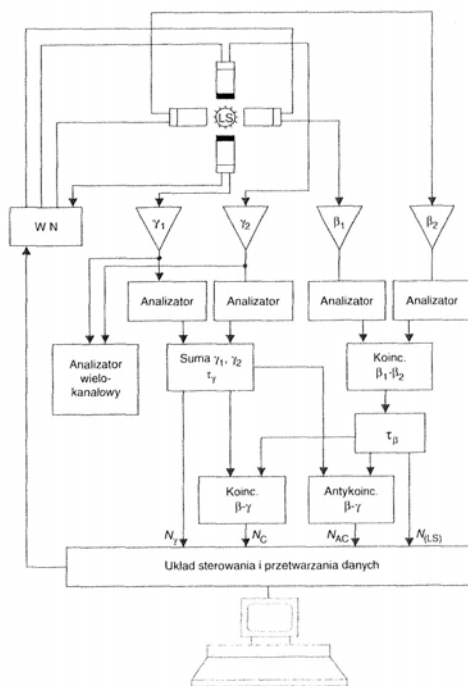
## Działanie państwowego wzorca JMAPR

Działanie państwowego wzorca JMAPR polega na odtwarzaniu jednostki miary przez wyznaczenie aktywności promieniotwórczej danego źródła za pomocą odpowiednio wybranych układów i bezwzględnych metod pomiarowych, opracowanych w LWR.

### *Układ pomiarowy $4\pi$ (LS)- $\gamma$ koincydencji i antykoincydencji*

System detektorów zawiera w sumie 4 fotopowielacze umieszczone w płaszczyźnie poziomej wokół komory optycznej ze źródłem pomiarowym.

W torze gamma, zawierającym dwa fotopowielacze ze scyntylatorami krystalicznymi NaI(Tl), pracującymi w układzie sumy celem zwiększenia wydajności detekcji, rejestrowane są fotony  $\gamma$  w wybranym zakresie energetycznym widma (tzw. parametr toru gamma).



Schemat ideowy układu pomiarowego  $4\pi$ (LS)- $\gamma$  koincydencji i antykoincydencji: LS – ciekły scyntylator, WN – zasilacz wysokiego napięcia,  $\tau$  – układ czasu martwego

Inne promieniowanie ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $X$ ,  $e_A$ ) jest rejestrowane w torze beta z ciekłym scyntylatorem i dwoma fotopowielaczami pracującymi w koincydencji celem obniżenia zliczeń tła pochodzących od szumów. Zależnie od rodzaju radionuklidu i emitowanego promieniowania można mówić o różnych bezwzględnych metodach pomiaru aktywności promieniotwórczej.

Rejestrowane są częstości zliczeń impulsów: w torze beta  $N_{(LS)}$ , w torze gamma  $N_\gamma$  oraz w torach koincydencji  $N_C$  i antykoincydencji  $N_{AC}$ . Zmieniane jest wysokie napięcie na fotopowielaczach toru beta, aby uzyskać zmianę wydajności detekcji  $\varepsilon_{(LS)}$ . Częstość rozpadów promieniotwórczych  $N_0$  w roztworze otrzymuje się z ekstrapolacji liniowych dla dwóch metod:

$$\frac{N_{LS}N_\gamma}{N_C} \rightarrow N_0 \quad \text{przy} \quad \frac{1-\varepsilon_{LS}}{\varepsilon_{LS}} \rightarrow 0 \quad \text{gdzie} \quad \varepsilon_{LS} = \frac{N_C}{N_\gamma}$$

$$\frac{N_{LS}N_\gamma}{N_\gamma - N_{AC}} \rightarrow N_0 \quad \text{przy} \quad \frac{1-\varepsilon_{LS}}{\varepsilon_{LS}} \rightarrow 0 \quad \text{gdzie} \quad \varepsilon_{LS} = \frac{N_\gamma - N_{AC}}{N_\gamma}$$

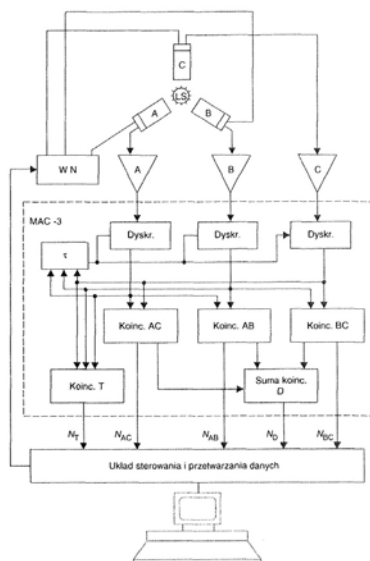
Pomiary kilku różnych parametrów toru gamma wzajemnie się weryfikują. Średnia ze wszystkich ekstrapolowanych wartości jest przyjmowana jako końcowy wynik pomiaru aktywności promieniotwórczej mierzonego źródła.

Gdy radionuklid rozpada się bez emisji promieniowania  $\gamma$ , wówczas stosowana jest tzw. metoda traserów. Na przykład w przypadku  $^{63}\text{Ni}$ , będącego tzw. „czystym” emiterym  $\beta$ , jako traser wybierany jest  $^{60}\text{Co}$  będący emiterym  $\beta - \gamma$ , a następnie wyznaczana jest jego aktywność promieniotwórcza  $A_{Co}$  za pomocą omówionej wcześniej metody. Do mieszaniny scyntylacyjnej dodawany jest „czysty” emiterym  $\beta$ , po czym wyznaczana jest aktywność promieniotwórcza sumarycznego źródła  $A_{Co+Ni}$ . Ekstrapolacja różnicy ( $A_{Co+Ni} - A_{Co}$ ) w funkcji zwiększanej ilości  $^{63}\text{Ni}$  w źródle sumarycznym wyznacza aktywność promieniotwórczą  $^{63}\text{Ni}$ .

### *Układ pomiarowy potrójno-podwójnych koincydencji TDK*

Układ pomiarowy TDK zawiera trzy fotopowielacze umieszczone koncentrycznie w płaszczyźnie poziomej, co  $120^\circ$  wokół komory optycznej ze źródłem pomiarowym w scyntylatorze ciekłym. Metoda potrójno-podwójnych koincydencji TDK jest przeznaczona głównie do pomiaru aktywności promieniotwórczej radionuklidów rozpadających się bez emisji promieniowania  $\gamma$ , czyli tzw. „czystych” emiterym  $\alpha$ ,  $\beta$  i „czystych” emiterym rozpadających się przez wychwyty elektronu.

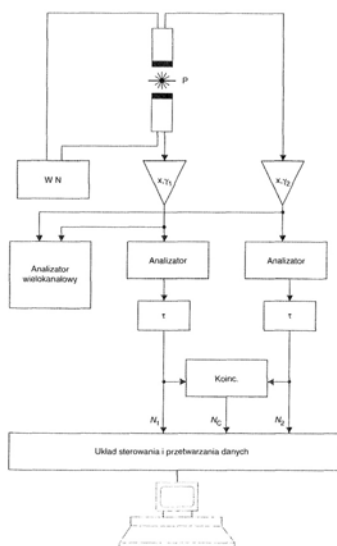
Częstości zliczeń impulsów są rejestrowane równocześnie w trzech torach koincydencji podwójnych ( $N_{AB}$ ,  $N_{BC}$ ,  $N_{AC}$ ), w torze koincydencji potrójnych ( $N_T$ ) oraz w torze sumy logicznej trzech koincydencji podwójnych ( $N_D$ ). Stosunek  $K = N_T/N_D$  stanowi charakterystyczny parametr metody TDK. Stosując teoretyczny model detektora z ciekłym scyntylatorem z dobranymi parametrami oraz uwzględniając schemat rozpadu radionuklidu i dane scyntylatora, można obliczyć wydajność detekcji układu pomiarowego  $\varepsilon(K)$ . Zmieniając  $\varepsilon$  przez zmianę potencjału elektrody skupiającej fotopowielaczy uzyskuje się serię punktów pomiarowych o różnych wartościach parametru  $K$  i dla każdego z nich oblicza się  $N_0(K) = N_D/\varepsilon_D(K)$ . Gdy spełniony jest warunek, że prosta regresji  $N_0$  względem  $K$  jest pozioma, to wartość średnia  $N_0$  wyznacza aktywność promieniotwórczą mierzonego źródła.



Schemat ideowy układu pomiarowego potrójno-podwójnych koincydencji: LS – ciekły scyntylator, WN – zasilacz wysokiego napięcia,  $\tau$  – układ czasu martwego

### Układ pomiarowy X- $\gamma$ koincydencji

Układ pomiarowy X- $\gamma$  koincydencji składa się z systemu dwóch detektorów z fotopowielaczami i cienkimi kryształami NaI(Tl). W szufladce między nimi umieszczane jest punktowe źródło pomiarowe przygotowane na podstawie z folii Mylar, naklejonej na pierścien ze stali kwasoodpornej. Źródło stanowi odważka roztworu promieniotwórczego naniesiona na część centralną podstawki i wysuszona. Trwałość źródła zapewnia dodanie substancji tworzącej trwałe i nierozpuszczalne sole z jonem radionuklidu.



Schemat ideowy układu pomiarowego X- $\gamma$  koincydencji: P – źródło punktowe na folii Mylar, WN – zasilacz wysokiego napięcia,  $\tau$  – układ czasu martwego

Metodą X- $\gamma$  koincydencji wyznacza się aktywność promieniotwórczą radionuklidów takich jak  $^{125}\text{I}$ , rozpadających się w wyniku wychwytu elektronu z emisją fotonów X i  $\gamma$  o energiach bardzo zbliżonych do siebie, które trudno odseparować w procesie detekcji.

Zarejestrowana częstości zliczeń fotonów  $X$  i  $\gamma$  w torze „gamma 1” ( $N_1$ ), w torze „gamma 2” ( $N_2$ ) oraz w torze koincydencji ( $N_C$ ) wyznacza częstość rozpadów promieniotwórczych  $N_0$  w mierzonym źródle:

$$N_0 = \frac{\left(N_1 + \frac{N_C}{2}\right)\left(N_2 + \frac{N_C}{2}\right)}{2N_C} \cdot 0,997$$

## Niepewność pomiaru

Niepewność złożona pomiaru aktywności promieniotwórczej liczona jest jako pierwiastek z sumy kwadratów niepewności składowych, związanych ze statystycznym charakterem rozpadów promieniotwórczych oraz z niepewnością parametrów aparatury pomiarowej, masy roztworu promieniotwórczego i danych jądrowych. Niepewność pomiaru zależy też od rodzaju radionuklidu, stosowanej metody pomiaru i stabilności pracy aparatury, która jest sprawdzana źródłami kontrolnymi  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{60}\text{Co}$  i  $^{133}\text{Ba}$  w zależności od układu. Równoległe stosowanie kilku metod pomiaru pozwala na weryfikację uzyskanych wyników i zmniejsza niepewność określenia aktywności promieniotwórczej. Wyznaczona niepewność złożona względna wzorców I rzędu dla różnych radionuklidów wynosi około 1–2 % przy współczynniku rozszerzenia  $k = 2$  (co odpowiada poziomowi ufności około 95 %).

Niepewność określenia aktywności promieniotwórczej wzorców niższych rzędów jest tym wyższa, im dłuższy łańcuch porównań dzieli je od państwowego wzorca JMAPR.

## Usługi świadczone za pomocą państwowego wzorca JMAPR

Przekazywanie jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów na wzorce niższego rzędu, wzorce robocze i przyrządy użytkowe odbywa się zgodnie z hierarchicznym układem sprawdzeń, zatwierdzonym przez Prezesa GUM.

W procesie wzorcowania wykorzystuje się roztwory promieniotwórcze różnych radionuklidów. Roztwór promieniotwórczy, którego stężenie promieniotwórcze (kBq/g) zostało obliczone na podstawie pomiaru w układach państwowego wzorca JMAPR oraz jego masy dodanej do źródła pomiarowego, staje się wzorcem I rzędu. Stosowanie wychyłowej różnicowej metody rozcieńczania umożliwia uzyskanie wzorców II i III rzędu.

Wzorce w postaci roztworu o żądanym stężeniu promieniotwórczym, są dostarczane klientom dla wzorcowania ich przyrządów pomiarowych, takich jak komory jonizacyjne, liczniki scyntylicyjne czy spektrometry gamma. LWR wykonuje również wzorcowanie przyrządów pomiarowych dostarczonych przez użytkownika. Dotyczy to w większości mierników aktywności z komorami jonizacyjnymi, które są wykorzystywane przez zakłady medycyny nuklearnej.

Z roztworów wzorcowych wytwarzane są źródła wzorcowe o różnych kształtach i budowie, odpowiednio do potrzeb klientów, a w szczególności:

- wzorcowe źródła punktowe zamknięte między krążkami folii polietylenowej lub krążkami pleksi, przeznaczone do wzorcowania spektrometrów gamma;
- wzorcowe źródła objętościowe multigamma w zlewkach typu Marinelli;
- wzorcowe źródła kontrolne do mierników aktywności;

- wzorcowe źródła symulacyjne np. MOCK  $^{131}\text{I}$  lub  $^{18}\text{F}$ ;
  - inne nietypowe źródła wzorcowe wykonywane na specjalne zamówienia.
- LWR w swojej działalności wykorzystuje także szereg układów do względnych pomiarów aktywności promieniotwórczej. Na wyposażeniu Laboratorium znajdują się m.in.:
- spektrometr scyntylacyjny beta WALLAC 1411,
  - spektrometr gamma z kryształem HPGe GX2018,
  - miernik aktywności z komorą jonizacyjną i licznikiem scyntylacyjnym NaI(Tl) CAPINTEC CRC-15beta,
  - miernik aktywności z komorą jonizacyjną ISOMED 2000,
  - zestaw liczników scyntylacyjnych NaI(Tl) o różnych geometriach kryształów.

Wymienione przyrządy pomiarowe, wzorcowane w odniesieniu do państwowego wzorca JMAPR, umożliwiają m.in. atestację źródeł i materiałów promieniotwórczych oraz preparatów radionuklidowych dostarczanych przez klientów, a także określanie metodami spektrometrii gamma czystości radionuklidowej i aktywności promieniotwórczej poszczególnych radionuklidów w próbkach.



Spektrometr scyntylacyjny beta WALLAC 1411

## Przykład wzorcowania

Przykład pokazuje wzorcowanie spektrometru promieniowania gamma z detektorem germanowym HPGe w odniesieniu do państwowego wzorca JMAPR. Przekazywanie jed-

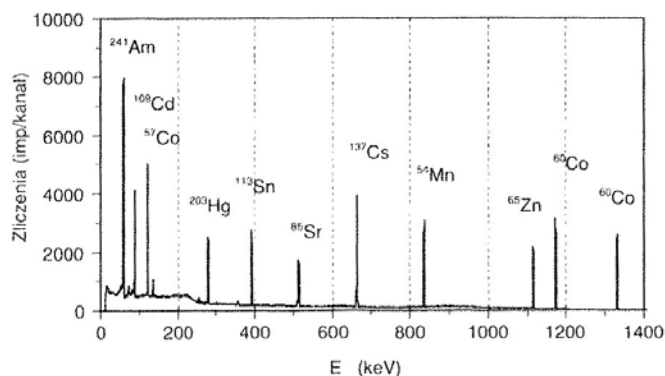


Spektrometr gamma GX2018 z kriostatem i kryształem HPGe



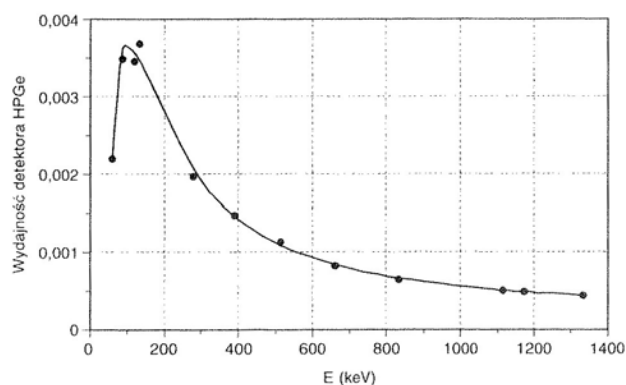
nostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów odbywa się za pośrednictwem roztworów promieniotwórczych. Metodą spektrometrii gamma sprawdza się, czy w roztworach nie występują zanieczyszczenia radionuklidowe.

Próbki roztworów różnych radionuklidów są przygotowywane wagowo w scyntylatorze ciekłym. Wyznaczane jest ich stężenie promieniotwórcze metodami pomiarowymi. Roztwory te (wzorce I rzędu), o odmierzonych masach ( $m$ ) i określonych aktywnościach ( $A$ ), są mieszane. Roztwór multi-gamma (wzorec II rzędu), zamknięty w butelce szklanej, jest ustawiany na detektorze HPGe i rejestrowane jest widmo promieniowania  $\gamma$ .



Widmo promieniowania roztworu multigamma zarejestrowane przez detektor HPGe

Mierzone są pola pod pikami ( $S_\gamma$ ) dla linii  $\gamma$  o energiach ( $E_\gamma$ ) i intensywnościach ( $I_\gamma$ ) znanych z tablic. Obliczana jest wydajność ( $\epsilon_\gamma$ ) detektora HPGe dla poszczególnych energii oraz jej niepewność złożona dla poziomu ufności 95 %. Empiryczna funkcja  $\epsilon_\gamma(E_\gamma)$  umożliwia określanie aktywności promieniotwórczej radionuklidów w badanej próbce na podstawie zarejestrowanego widma  $\gamma$ .

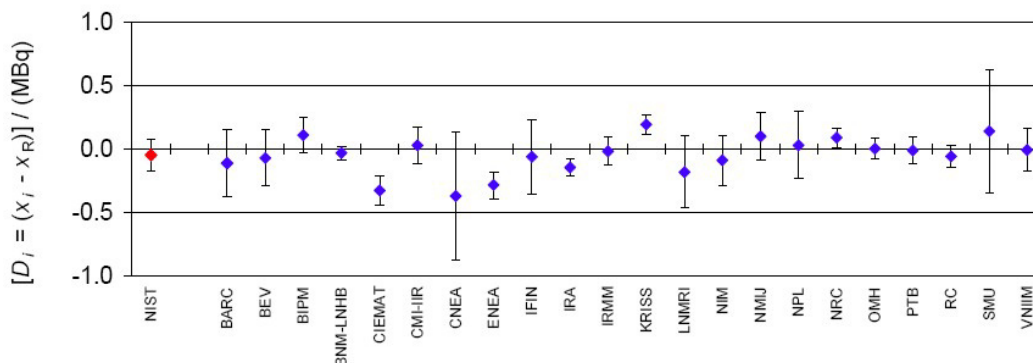


Wydajność detektora HPGe w funkcji energii fotonów  $\gamma$

## Powiązanie ze światowym systemem wzorców

Państwowy wzorec JMAPR jest powiązany ze światowym systemem wzorców dzięki międzynarodowym porównaniom pomiarów aktywności radionuklidów, organizowanym m.in. przez Międzynarodowe Biuro Miar (BIPM), EUROMET (obecnie EURAMET) i Międzynarodowy Komitet Metrologii Radionuklidów (ICRM). Uczestniczące w porówna-

niu laboratoria metrologiczne z całego świata, stosując różne bezwzględne metody pomiarowe, określają stężenie promieniotwórcze rozesłanego roztworu wybranego radionuklidu.



Przykład rezultatów międzynarodowego porównania wyników pomiarów aktywności roztworu  $^{152}\text{Eu}$  (BIPM, październik 2000). Wynik LWR oznaczony jako RC (Radioisotope Centre)

LWR w ostatnich 30 latach brało udział w ponad 30 porównaniach międzynarodowych, uzyskując zadowalające wyniki.

## System zarządzania

Laboratorium Wzorców Radioaktywności posiada wdrożony system zarządzania zgodny z wymogami normy PN-EN ISO/IEC 17025:2005. Potwierdzeniem jest przyznanie Laboratorium przez Polskie Centrum Akredytacji w grudniu 2008 roku statusu akredytowanego laboratorium wzorcującego, numer akredytacji AP 120. Akredytacja obejmuje swoim zakresem wzorcowanie roztworów promieniotwórczych i źródeł stałych pojedynczego radionuklidu oraz wzorcowanie mierników do pomiaru aktywności.

## Działalność Laboratorium

Laboratorium Wzorców Radioaktywności zorganizowało w 2007 r. w placówkach medycyny nuklearnej w Polsce porównanie pomiarów aktywności radionuklidów stosowanych powszechnie do diagnostyki i terapii – eluatu  $^{99}\text{Tc}^m$  i kapsułek  $^{131}\text{I}$ . Celem porównania była ocena dokładności pomiarów aktywności w tych placówkach i porównanie wyników z państwowym wzorcem jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów. Organizacja porównania została dofinansowana z dotacji Państwowej Agencji Atomistyki i zyskała poparcie Polskiego Towarzystwa Medycyny Nuklearnej.

W porównaniu pomiarów wzięło udział 37 placówek spośród 58, do których wysłano zaproszenia. Źródła do pomiarów, eluat  $^{99}\text{Tc}^m$  w szklanych fiolkach próżniowych oraz nisko- i wysokoaktywne kapsułki  $^{131}\text{I}$ , były wytwarzane w OR POLATOM, wzorcowane w układzie pomiarowym z komorą jonizacyjną  $4\pi$  w odniesieniu do państwowego wzorca JMAPR i dostarczane uczestnikom porównania sukcesywnie w ciągu 4 miesięcy do pomiaru ich własnymi miernikami aktywności. Uczestnicy przesyłali wyniki pomiarów do LWR.



Wynik podany przez uczestnika porównania i wynik wzorcowania w LWR przeliczono na tę samą datę referencyjną i liczone ich stosunek. Do oceny wyników zastosowano statystyczne kryterium znormalizowanego odchylenia standardowego, przyjmując, że dla pomiarów aktywności w placówkach medycyny nuklearnej zadowalający jest wynik leżący przedziale  $\pm 5\%$  w stosunku do państwowego wzorca JMAPR, a akceptowalny nie różni się więcej niż o  $\pm 7.6\%$ . Zastosowanie kryterium stopnia równoważności  $E_n$  nie było możliwe, gdyż nie wszyscy uczestnicy porównania oszacowali niepewności swych pomiarów.

Uczestnicy porównania użyli do pomiarów mierniki aktywności 22. różnych typów. Nadesłano w sumie 118 wyników pomiarów, w tym – 23 wyniki niezadowalające. Wyniki zadowalające i akceptowalne wynosiły: 75 % (eluat  $^{99}\text{Tc}^m$ ), 69,2 % (niskoaktywne kapsułki  $^{131}\text{I}$ ) i 82 % (wysokoaktywne kapsułki  $^{131}\text{I}$ ).

Dokładność większości pomiarów aktywności  $^{99}\text{Tc}^m$  i  $^{131}\text{I}$  wykonanych przez uczestników porównania była zadowalająca. Zaplanowano również organizację kolejnych tego typu porównań w Polsce dla innych radionuklidów.

## Podsumowanie

Od ponad 30. lat w LWR w OR POLATOM IEA wykonywane są wzorcowania roztworów radionuklidów za pomocą metod bezwzględnych. Zgromadzone doświadczenie oraz uczestnictwo w wielu międzynarodowych porównaniach pomiarów aktywności zaowocowało ustanowieniem państwowego wzorca JMAPR. Podstawą funkcjonowania tego wzorca jest technika ciekłych scyntylatorów. LWR dysponuje metodami pomiarowymi wzorcowania aktywności promieniotwórczej roztworów dowolnych radionuklidów. W przypadku wzorców I rzędu niepewność złożona względna wynosi około 1–2 %, przy współczynniku rozszerzenia  $k = 2$ . Przygotowywane w OR POLATOM wzorce niższego rzędu są powiązane z państwowym wzorcem JMAPR za pomocą hierarchicznego układu sprawdzeń.

*Tomasz Dziel*

*dr Ryszard Broda*

*Laboratorium Wzorców Radioaktywności*

*Ośrodek Radioizotopów POLATOM*

*Instytut Energii Atomowej w Świerku*