

"Padronização de uma solução de I-125 pela extrapolação de uma curva de eficiência obtida pelo método de contagem em coincidência X-(X,gama) "

SUMÁRIO

Iwahara, Akira
 Depto de metrologia
 IRD

| | |
|---|----|
| Resumo | i |
| Abstract | ii |
| 1. Introdução | 01 |
| 2. Descrição do método | 02 |
| 2.1 Esquema de decaimento do ^{125}I | 02 |
| 2.2 Equações para a contagem em coincidência | 02 |
| 2.3 Arranjo experimental e resultados | 05 |
| 3. Comparação com outros métodos | 07 |
| 4. Determinação da probabilidade de emissão gama de 35,5 keV do ^{125}I | 07 |
| 5. Conclusões | 08 |
| Figura 1. Esquema de decaimento do ^{125}I | 10 |
| Figura 2. Sistema de coincidência foton-foton com 2 detetores de cintilação de NaI(Tl) | 11 |
| Figura 3. Espectro de foton do ^{125}I com detetor de NaI(Tl) 5,0x0,2 cm | 12 |
| Figura 4. Espectro de distribuição de tempo entre os pulsos dos 2 detetores de NaI(Tl) do sistema de coincidência | 13 |
| Figura 5. Concentração da atividade $n_1 n_2 / n_c$ em função de $x = \frac{K}{1+K} (\epsilon_1 + \epsilon_2) - \left(\frac{K}{1+K}\right)^2 \epsilon_1 \epsilon_2$ | 14 |
| Figura 6. Resíduos ΔY dos valores experimentais e ajustados em função de x | 15 |

1. Encontro Regional sobre
 Aplicações médicas do Nordeste
 Recife, 25-28 abr 89

| | |
|--|----|
| Figura 7. Espectro de ftons do ^{125}I com detetor de Ge tipo Gamma-X | 16 |
| Figura 8. Curva de eficiêcia do detetor de Ge tipo Gamma-X | 17 |
| Tabela 1. Atividade das fontes de ^{125}I | 18 |
| Tabela 2. Componentes da incerteza | 19 |
| Tabela 3. Resultados e métodos | 20 |
| Tabela 4. Probabilidade de emissão gama I_{γ} de 35,5 keV do ^{125}I | 20 |
| Tabela 5. Valores de I_{γ} encontrados na literatura e no presente trabalho | 21 |
| Referências | 22 |

R E S U M O

Foi determinada a concentração de atividade de uma solução de ^{125}I pelo método de coincidência X-(X, γ) e extrapolação de uma curva de eficiência. O sistema de medida é constituído de 2 detetores de NaI(Tl) de janela fina que se movem horizontalmente em cima de um trilho. A curva de eficiência é obtida variando-se simetricamente a distância entre a fonte e os detetores e a atividade é determinada extrapolando-se linearmente essa curva. As contagens incluem todos os eventos coincidentes somados entre 10 e 100 keV e a principal fonte de incerteza no resultado é devido à baixa estatística de contagem na região de eficiências próximas a zero. A consistência dos resultados com outros métodos mostra que esta técnica pode ser aplicada para radionuclídeos que emitem ftons em cascata e cujas energias não podem ser discriminadas pelo sistema de medida.

Determinou-se também a probabilidade de emissão gama de 35,5 keV do ^{125}I utilizando um detetor de germânio de alta pureza tipo Gamma-X.

A B S T R A C T

The activity concentration of ^{125}I was determined by X-(X, γ) coincidence counting method and efficiency extrapolation curve. The measurement system consists of 2 thin NaI(Tl) scintillation detectors which are horizontally movable on a track. The efficiency curve is obtained by symmetrically changing the distance between the source and the detectors and the activity is determined by applying a linear efficiency extrapolation curve. All sum-coincidence events are included between 10 and 100 keV window counting and the main source of uncertainty is coming from poor counting statistic around zero efficiency. The consistence of results with other methods shows that this technique can be applied to photon cascade emitters and are not discriminating by the detectors.

It has been also determined the 35,5 keV gamma-ray emission probability of ^{125}I by using a Gamma-X type high purity germanium detector.

PADRONIZAÇÃO DE UMA SOLUÇÃO DE ^{125}I PELA
EXTRAPOLAÇÃO DE UMA CURVA DE EFICIÊNCIA
OBTIDA PELO MÉTODO DE CONTAGEM EM COINCIDÊNCIA X-(X,Y).

A. Iwahara

M. H. H. Marechal

C. J. de Silva

R. Poledna

Instituto de Radioproteção e Dosimetria
(IRD/CNEN)

1. INTRODUÇÃO

O Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) organiza periodicamente comparações internacionais para medida de atividade de soluções radioativas com participação de Laboratórios de Metrologia de vários países. Para o ano de 1988 foi escolhido o ^{125}I , um radionuclídeo muito importante na Medicina Nuclear e de difícil calibração por ser um emissor de ftons de baixa energia.

Dentro os 4 métodos de medida sugeridos pelo BIPM¹ o Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN) escolheu, para a padronização do ^{125}I , o método de contagem em pico-soma e o método de coincidência X-(X,Y) e extrapolação de uma curva de eficiência.

Este trabalho apresenta os resultados da padronização de uma solução de ^{125}I pelo método de coincidência X-(X,

γ) e também a determinação da probabilidade de emissão gama (I_γ) de 35,5 keV utilizando um detetor de Ge de alta pureza.

2. DESCRIÇÃO DO MÉTODO

2.1 Esquema de decaimento do ^{125}I

O ^{125}I se desintegra 100% por captura eletrônica para o nível excitado de 35,5 keV do ^{125}Te seguido de uma radiação gama fortemente convertida de 35,5 keV. A figura 1 mostra o esquema de decaimento de $^{125}\text{I}^2$.

Tanto o processo de captura eletrônica como o de conversão de elétron é acompanhado pela emissão de raios-X da camada L (3,33 e 4,93 keV) e da camada K (27,2017 e 31,8114 keV).

2.2 Equações para a contagem em coincidência

O método de coincidência X-(X, γ) é baseado na contagem de coincidências entre os raios-X provenientes da captura eletrônica e os gama ou raios-X originados da de-excitação do nível de 35,5 keV do $^{125}\text{Te}^3$.

Neste método o sistema de coincidência é constituído de 2 detetores de cintilação de NaI(Tl) colocados horizontal e simetricamente em relação à fonte radioativa. A fonte é presa num suporte entre os 2 detetores permitindo a variação da distância da fonte aos detetores.

Para verificar a sensibilidade dos detetores aos elétrons de conversão foram feitas medidas com e sem absorve

dores de alumínio, não se verificando nenhuma variação nas contagens.

As taxas de contagem devidas aos detetores 1 e 2 e as coincidências poderão ser expressas da seguinte maneira:

$$n_1 = n_0 (\epsilon_1 + K\epsilon_1 - K\epsilon_1^2) \quad (1)$$

$$n_2 = n_0 (\epsilon_2 + K\epsilon_2 - K\epsilon_2^2) \quad (2)$$

$$n_c = n_0 2K\epsilon_1\epsilon_2 \quad (3)$$

onde

n_0 : taxa de desintegração ou atividade

n_1 : taxa de contagem do detetor 1

n_2 : taxa de contagem do detetor 2

n_c : taxa de contagem em coincidência

ϵ_1 e ϵ_2 : probabilidade, por desintegração, de contar raio X proveniente da captura eletrônica no detetor 1 e 2, respectivamente

$K\epsilon_1$ e $K\epsilon_2$: probabilidade, por desintegração, de contar raio X ou gama proveniente da de-excitação do nível de 35,5 keV do ^{125}Te no detetor 1 e 2, respectivamente

$$K = \frac{(1 + \alpha_k w_k)}{P_k w_k} \frac{1}{1 + \alpha}$$

α_k : coeficiente de conversão interna da camada K-11,9±0,2²

η_k : rendimento de fluorescência da camada $K=0,877 \pm 0,020^2$

P_k : probabilidade de captura eletrônica da camada $K=0,797 \pm 0,001^2$

α : coeficiente de conversão interna total $=14,0 \pm 0,3^2$

Combinando-se as equações (1), (2) e (3) obtém-se a equação de coincidência:

$$\frac{n_1 n_2}{n_c} = n_0 \frac{(1+K)^2}{2K} \left(1 - \frac{K}{1+K} (\epsilon_1 + \epsilon_2) + \left(\frac{K}{1+K} \right)^2 \epsilon_1 \epsilon_2 \right) \quad (4)$$

Chamando $(n_1 n_2)/n_c = Y$ e

$\left(\frac{K}{1+K} (\epsilon_1 + \epsilon_2) - \left(\frac{K}{1+K} \right)^2 \epsilon_1 \epsilon_2 \right) = x$ a expressão (4) pode ser en

tendida como uma função linear do tipo

$$Y = n_0 \frac{(1+K)^2}{2K} (1 - x) \quad (5)$$

Extrapolando a expressão (5), ou seja, para $x \rightarrow 0$ / (ou $\epsilon_1, \epsilon_2 \rightarrow 0$) tem-se

$$\frac{n_1 n_2}{n_c} \rightarrow n_0 \frac{(1+K)^2}{2K} \quad (6)$$

e consequentemente o valor de n_0 .

Dividindo-se a expressão (3) por (1) e (3) por (2) e eliminando-se ϵ_2 , obtém-se ϵ_1 :

$$\epsilon_1 = \frac{\left(\frac{1+K}{2K}\right) \frac{n_c}{n_2} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{n_c}{n_1}\right)}{1 - \frac{1}{4} \frac{n_c^2}{n_1 n_2}} \quad (7)$$

Analogamente para ϵ_2 tem-se:

$$\epsilon_2 = \frac{\left(\frac{1+K}{2K}\right) \frac{n_c}{n_1} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{n_c}{n_2}\right)}{1 - \frac{1}{4} \frac{n_c^2}{n_2 n_1}} \quad (8)$$

As taxas de contagem n_1 , n_2 e n_c foram corrigidas para tempo morto e coincidências acidentais utilizando as fórmulas desenvolvidas por Bryant⁵.

2.3 Arranjo experimental e resultados

O sistema de coincidência é constituído de 2 detetores de cintilação de NaI(Tl) de 5,0 cm de diâmetro e 0,2 cm de espessura montados sobre um trilho em posições simetricamente opostas (figura 2). Neste arranjo a variação da distância entre a fonte e os detetores foi em passo de 1 mm e 5 mm dependendo das circunstâncias. A distância mínima (isto é, ϵ_1 e ϵ_2 máximas) foi 1 mm e a máxima (ϵ_1 e ϵ_2 mínimas) foi de 12 cm.

O tempo morto dos 2 canais de contagem foi fixado eletronicamente em $(5,2 \pm 0,05)$ μ s e o tempo de resolução do cir

cuito de coincidência em $(0,802 \pm 0,004)$ μ s.

As fontes de ^{125}I foram preparadas depositando-se cerca de 30 mg da solução ativa sobre filmes de VYNS (espessura de $\sim 20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$). Em seguida adicionou-se uma gota de AgNO_3 (160 $\mu\text{g}/\text{g}$ de solução) para precipitação do Iodo como AgI.

Após a secagem efetuada dentro de um dessecador contendo sílica-gel, cobriu-se as fontes com outro filme de VYNS de mesma espessura para evitar possível evaporação.

Os detetores de NaI(Tl) utilizados não apresentaram boa resolução como se pode observar no espectro de um dêles mostrado na figura 3. Os limites de contagem nos 2 canais de contagem foram fixados entre 10 e 100 keV.

O espectro de distribuição dos intervalos de tempo entre os pulsos provenientes dos 2 detetores é mostrado na figura 4.

Foram medidas 9 fontes com o tempo de contagem variando de 100 a 10.000 s dependendo da distância da fonte aos detetores.

A tabela 1 mostra os resultados obtidos após ajuste pelo método dos mínimos quadrados para as 9 fontes, aplicando a expressão (5).

A tabela 2 mostra os componentes da incerteza que afeta o resultado da atividade obtida na tabela 1.

A incerteza total é determinada combinando-se quadraticamente os componentes individuais, considerados como aproximações dos desvios padrões correspondentes⁶.

A figura 5 mostra os dados experimentais de uma fonte ajustados linearmente pelo método dos mínimos quadrados. Os resíduos de ajuste mostram a boa linearidade do comportamento dos pontos, pois não ultrapassam a 1,0% para todas as distâncias (figura 6).

A inclinação relativa (inclinação/intersecção) determinada experimentalmente $(-1,035 \pm 0,013)$ apresentou um valor

ligeiramente maior que o valor teórico esperado de -1 conforme a expressão (5). As causas prováveis para esta discrepância são: variação da radiação de fundo nas diversas posições de contagem, estatística de contagem, perda de simetria dos detetores em relação à fonte durante a variação das posições e instabilidade do sistema de medida.

O resultado final da concentração da atividade foi expressa pela média ponderada das 9 fontes (1434,7±5,9) kBq/g na data de referência de 15/05/88 às 00H00 TU.

3. COMPARAÇÃO COM OUTROS MÉTODOS

Os resultados obtidos foram convergentes com outros métodos utilizados pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN) que participou da comparação juntamente com o IRD (tabela 3). Nesta tabela os métodos 1, 2 e 3 se referem, respectivamente ao método de contagem em pico-soma, método de contagem em coincidência foton-foton e método de contagem em coincidência X-(X,y) e extrapolação de uma curva de eficiência.

4. DETERMINAÇÃO DA PROBABILIDADE DE EMISSÃO GAMA DE 35,5 keV DO ^{125}I

Para a calibração de espectrometros gama é muito importante o conhecimento exato da atividade dos padrões utilizados bem como as intensidades de emissão gama (I_γ) destes radionuclídeos.

Como existem poucos radionuclídeos adequados com e-

nergia gama na região de 35 keV, a medida de I_{γ} de 35,5 keV do ^{125}I adquire uma importancia muito grande.

Neste trabalho determinou-se o valor de I_{γ} utilizando-se um detetor de Ge de alta pureza modelo ORTEC GMX-10180 com 1560 mm^2 de área, 37,7 mm de espessura e 0,5 mm de janela de berílio. A figura 7 mostra o espectro de ^{125}I obtido com este detetor.

Para obtenção da curva de eficiência foram utilizadas fontes de ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{241}Am , ^{57}Co e ^{109}Cd adquiridos comercialmente do Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionizants (LMRI-França) e os pontos experimentais ajustados por um polinômio de 2º grau (figura 8).

O valor de I_{γ} foi determinado utilizando-se a curva de eficiência da figura 8 e medidas de 5 das 9 fontes de ^{125}I utilizadas para a sua padronização (tabela 4).

A tabela 5 mostra alguns valores de I_{γ} encontrados na literatura e o valor determinado neste trabalho.

5. CONCLUSÕES

Os resultados mostram que a extrapolação linear de uma curva de eficiência obtida pelo método de contagem em coincidência X-(X, γ) é compatível com outros métodos de padronização de ^{125}I conforme a tabela 3. Neste trabalho os detetores foram simplesmente cobertos com uma capa de chumbo de 3 mm de espessura, fixa, determinando-se uma taxa média de radiação de fundo para todas as distâncias entre a fonte e os detetores. Isto foi a principal fonte de incerteza no resultado final pois a estatística de contagem é muito baixa na região de eficiências próximas a zero. Este método depende

dos parâmetros nucleares de decaimento para o cálculo da cons
tante K, entretanto o erro introduzido na determinação da con
centração da atividade devido à incerteza nesses parâmetros
não é superior a 0,20%.

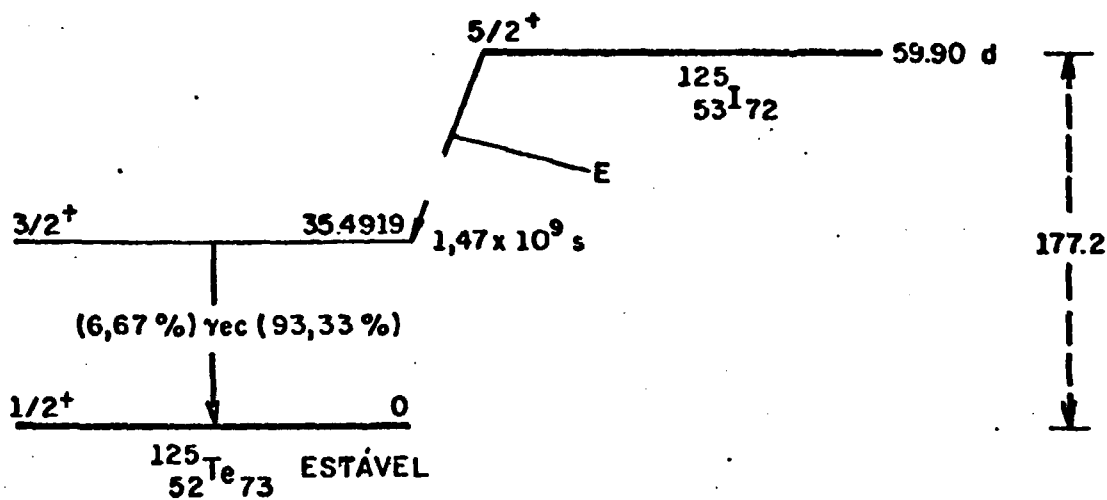
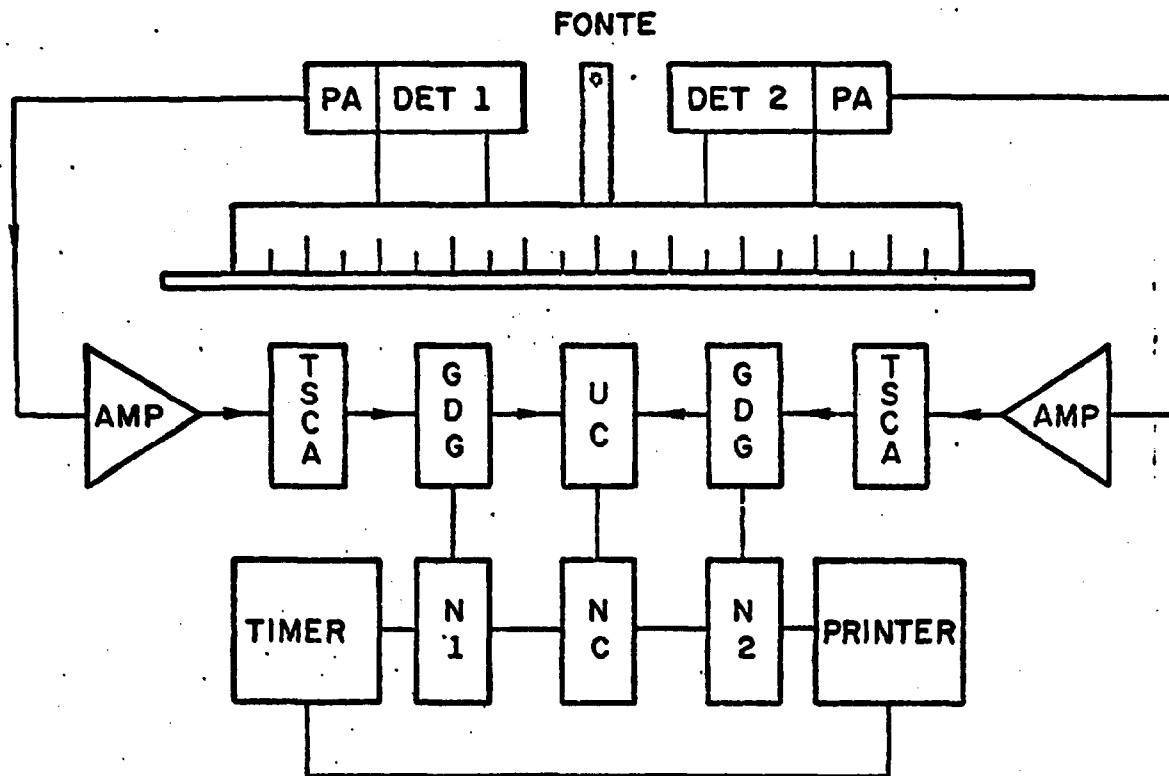


Fig. 1 : ESQUEMA DE DECAIMENTO DE ¹²⁵I.



- | | | | |
|-----|--------------------|-------|------------------------------------|
| DET | - DETETOR | TSCA | - ANALISADOR MONOCANAL COM RETARDO |
| PA | - PRÉ-AMPLIFICADOR | GDC | - GERADOR DE RETARDO E GATILHO |
| AMP | - AMPLIFICADOR | UC | - UNIDADE DE COINCIDÊNCIA |
| | | N_i | - CONTADORES |

FIG. 2: SISTEMA DE COINCIDÊNCIA FOTON-FOTON COM 2 DETETORES DE CINTILAÇÃO DE NaI (TI) .

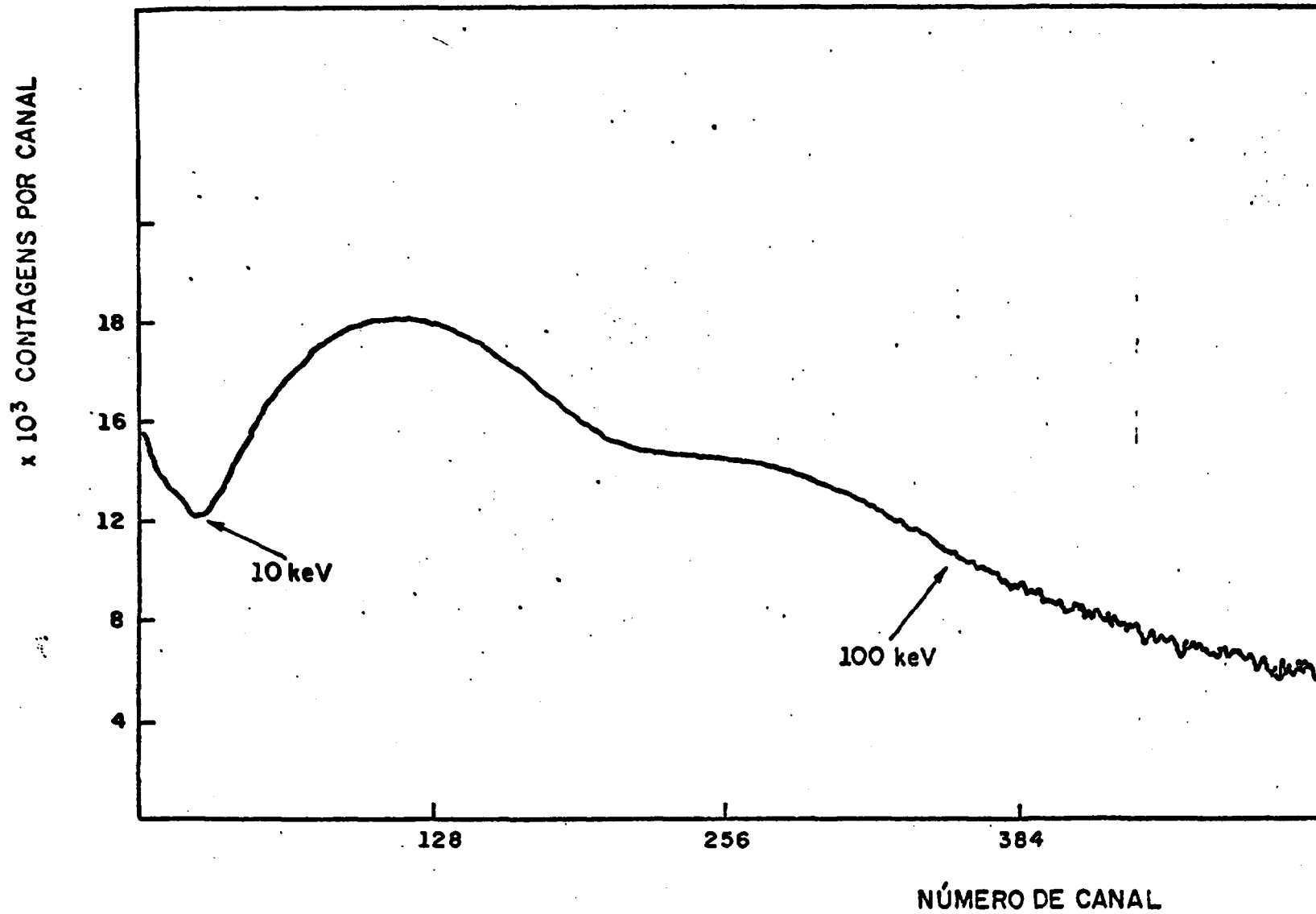


FIG.3: ESPECTRO DE FOTON DO ^{125}I COM DETETOR DE NaI (TI) 3" x 0,2".

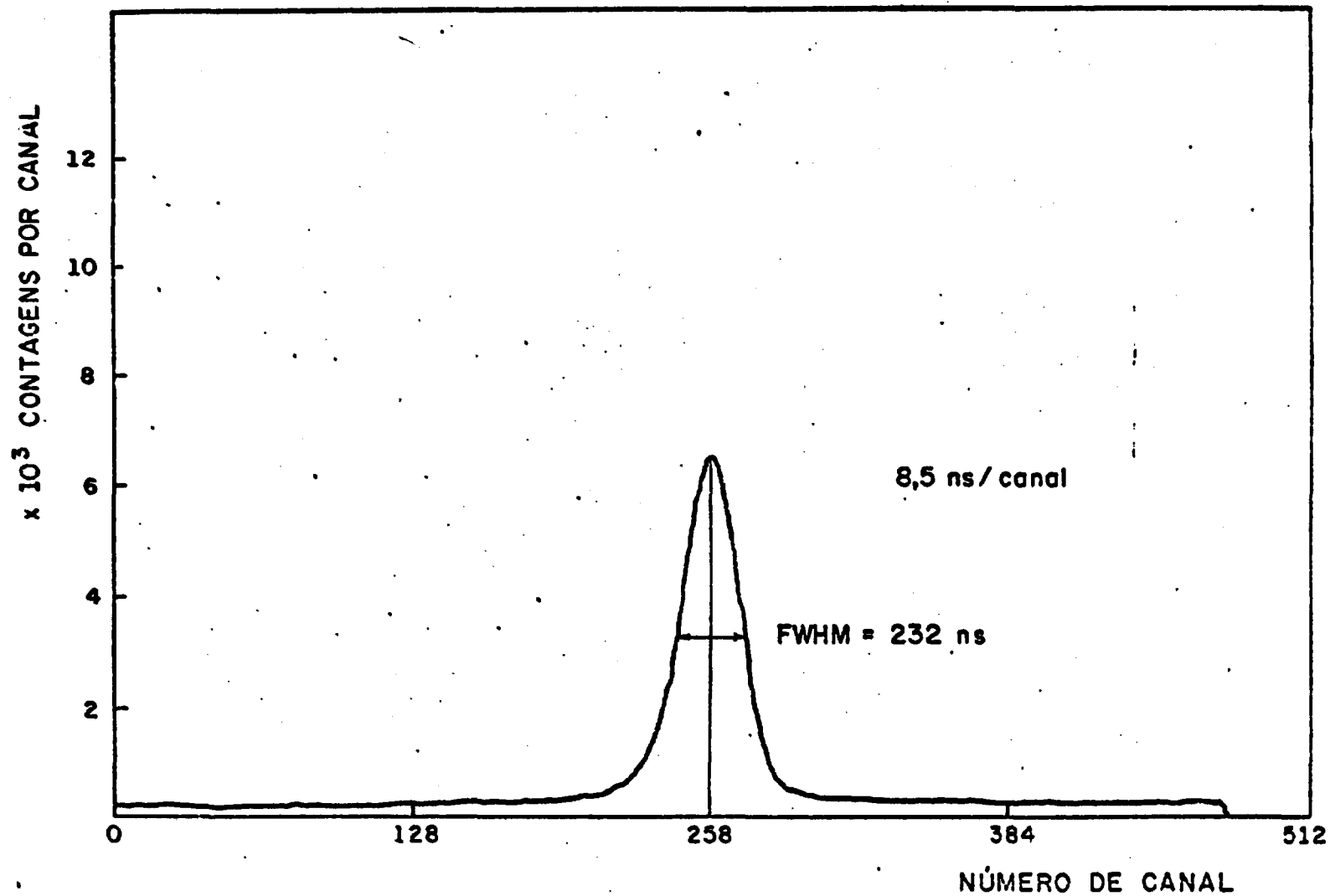


FIG. 4: ESPECTRO DE DISTRIBUIÇÃO DE TEMPO ENTRE OS PULSOS DOS 2 DETETORES DE NaI(Tl) DO SISTEMA DE COINCIDÊNCIA.

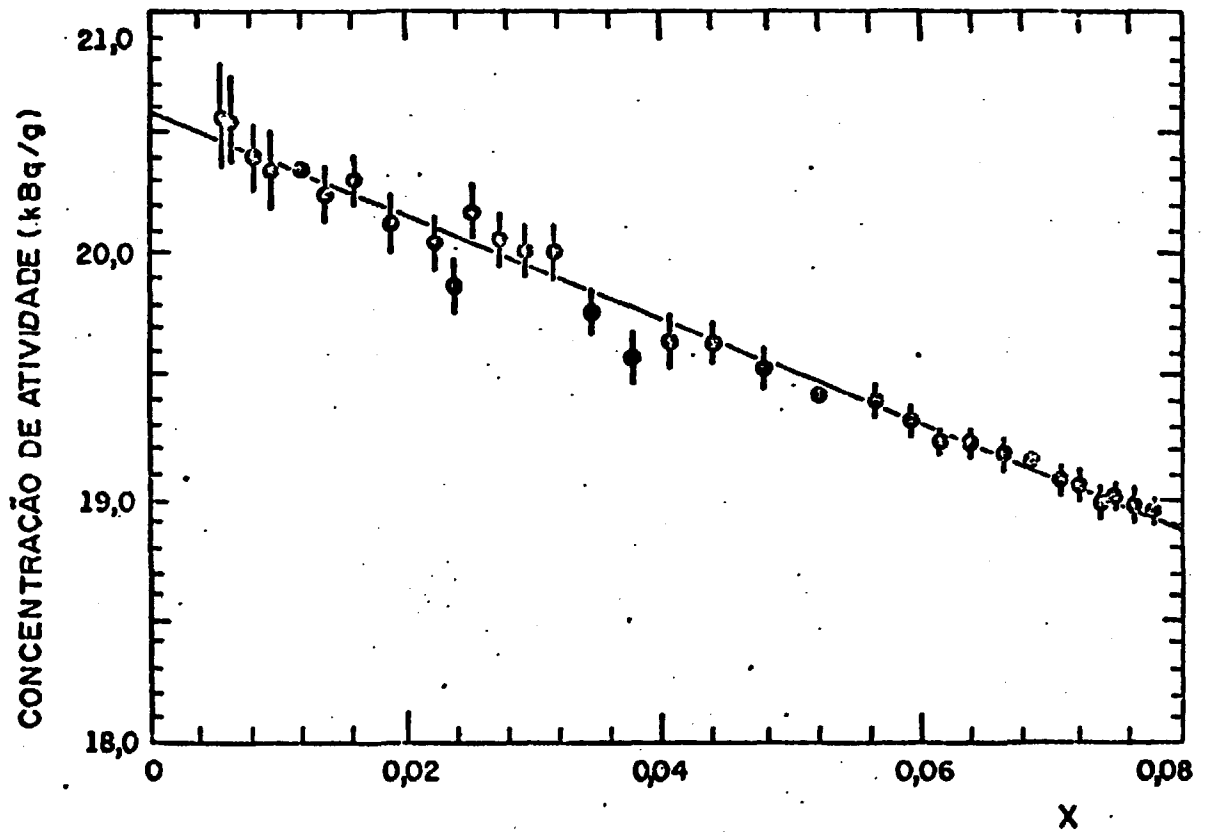


FIG. 5: CONCENTRAÇÃO DA ATIVIDADE $n_1 n_2 / 2n_c$ EM FUNÇÃO DE

$$x = \frac{k}{1+k} (\epsilon_1 + \epsilon_2) - \left(\frac{k}{1+k}\right)^2 \epsilon_1 \epsilon_2 .$$

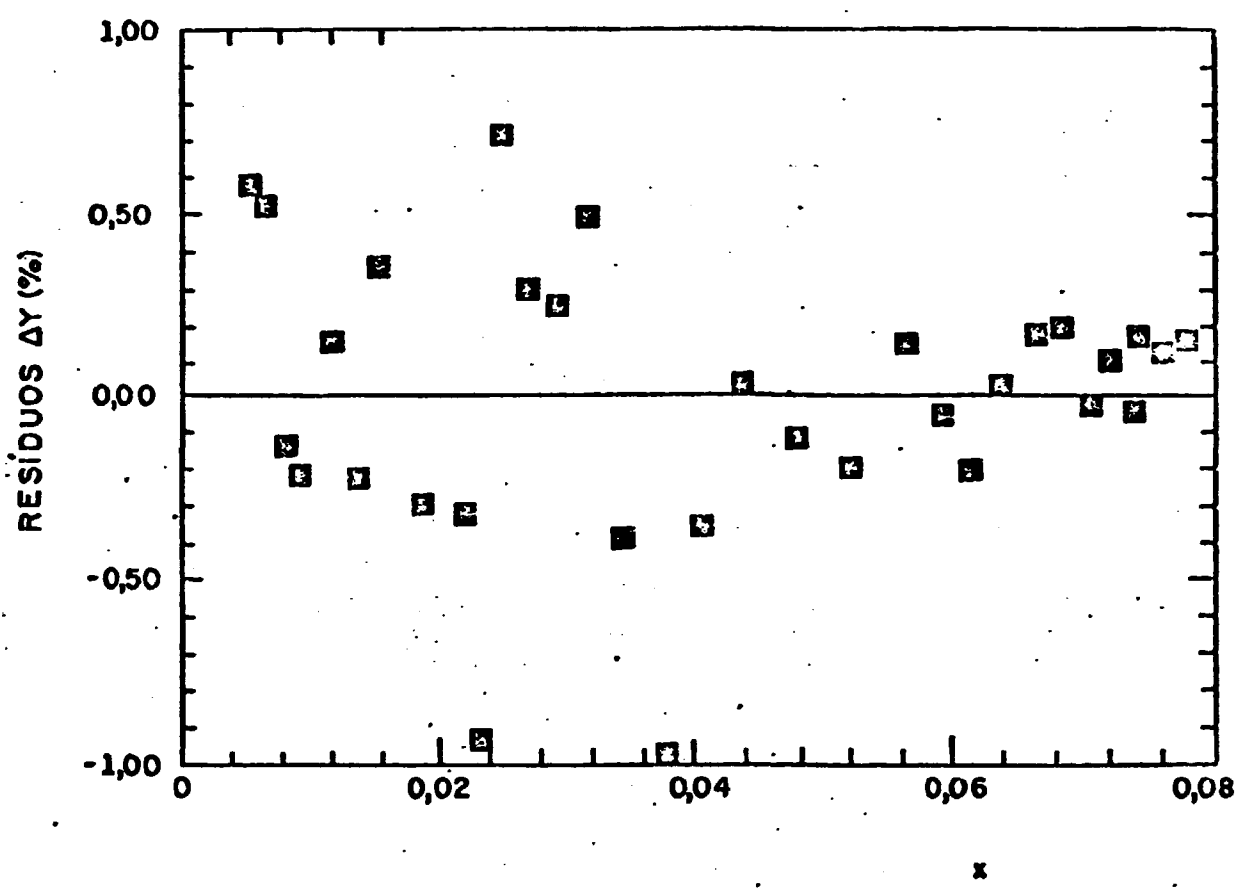


FIG. 6: RESÍDUOS ΔY DOS VALORES EXPERIMENTAIS E AJUSTADOS EM FUNÇÃO DE x.

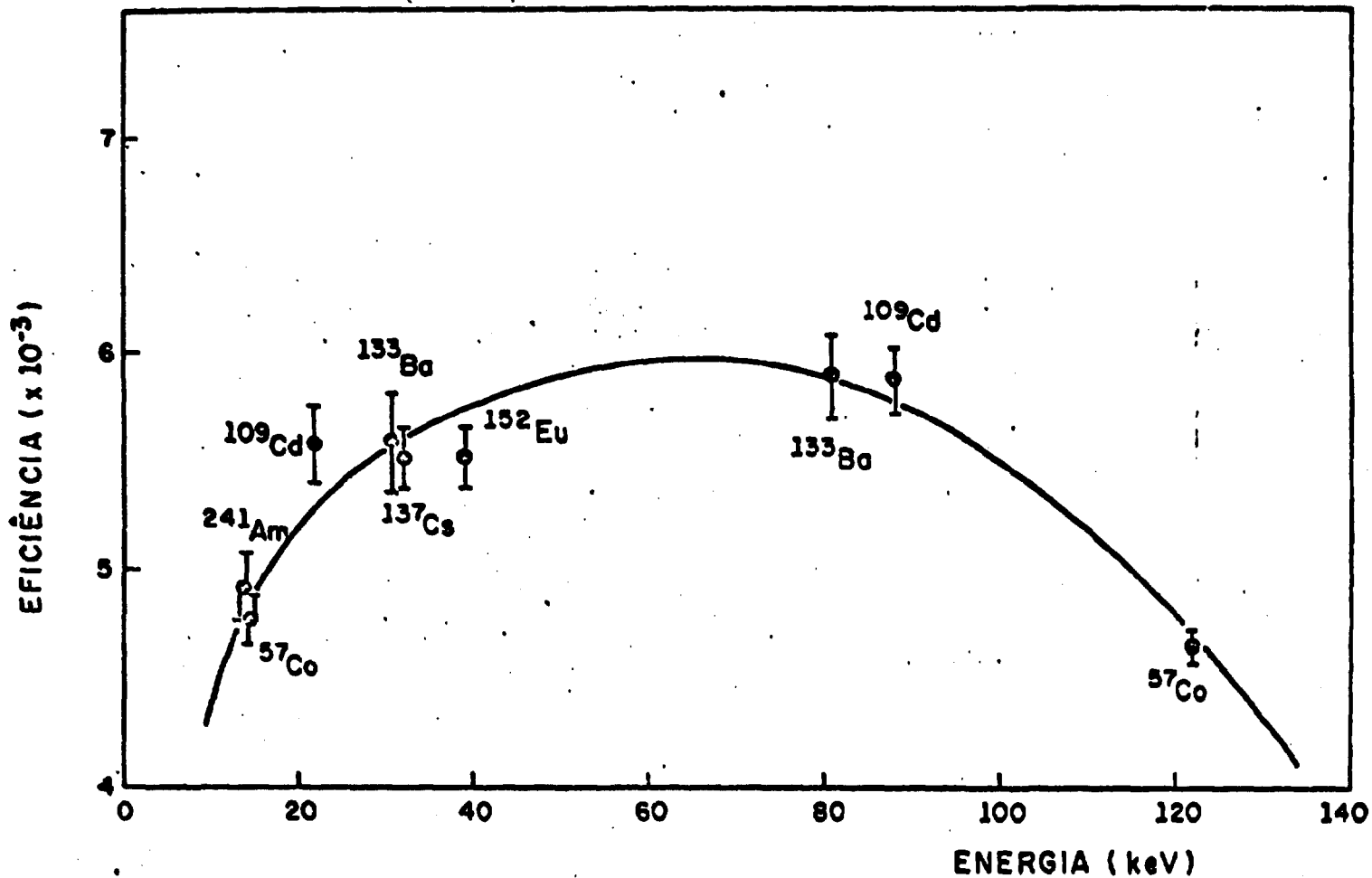


FIG. 7 : CURVA DE EFICIÊNCIA DO DETETOR DE Ge TIPO GAMMA-X.

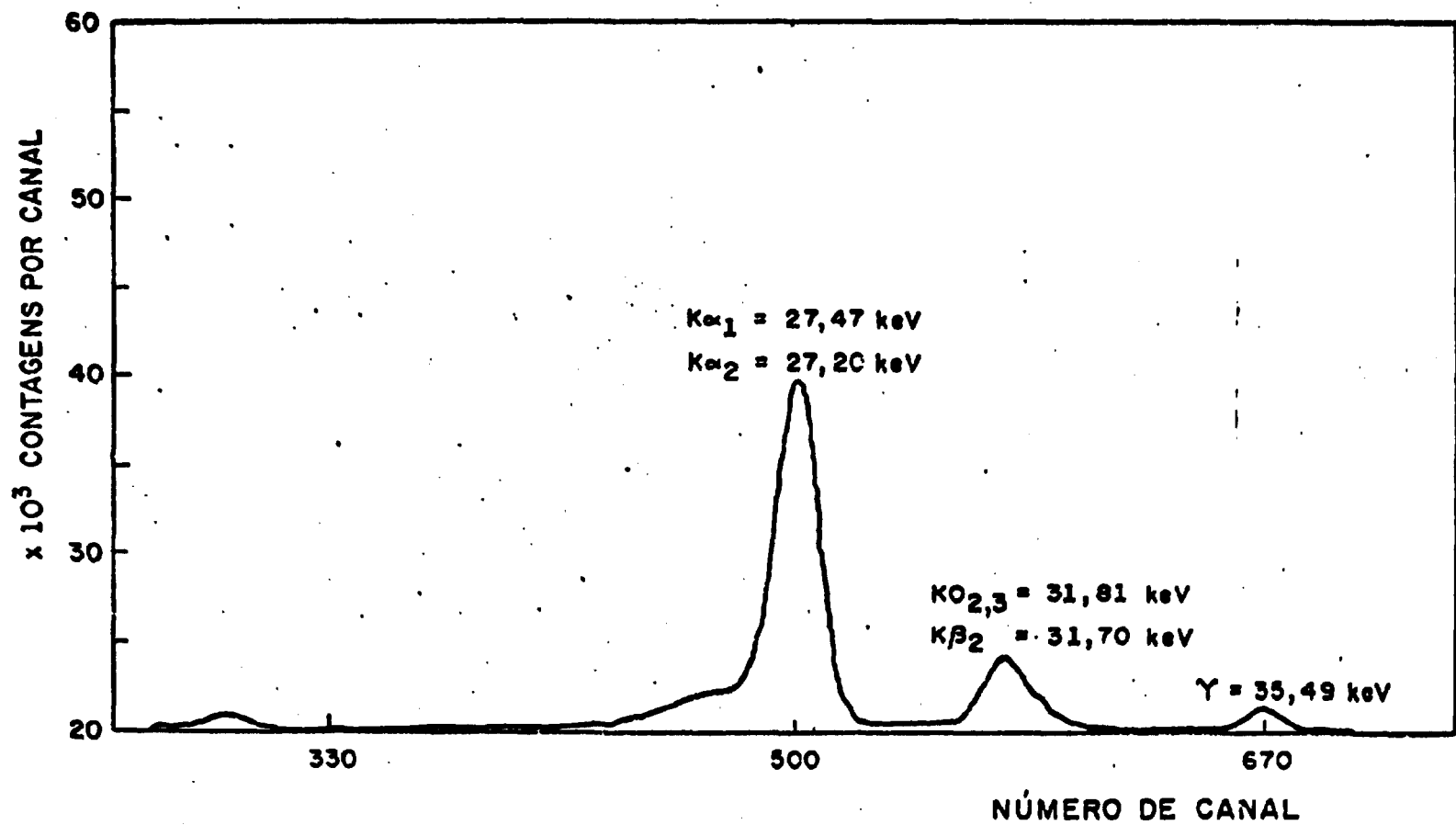


FIG.8: ESPECTRO DE FOTON DO ^{125}I COM DETETOR DE Ge TIPO GAMMA-X.

Tabela 1 Atividade das fontes de ^{125}I .

| Fonte | Atividade $\pm \sigma$ (kBq/g) | Inclinação/ Intersecção | Coefficiente de correlação |
|--|-----------------------------------|----------------------------|-------------------------------|
| 01 | 1427,72 \pm 2,74 | -1,013288 | -0,980130 |
| 02 | 1424,55 \pm 2,20 | -0,975891 | -0,979981 |
| 03 | 1435,22 \pm 3,67 | -1,009578 | -0,975046 |
| 04 | 1431,39 \pm 1,96 | -1,020653 | -0,992718 |
| 05 | 1437,74 \pm 2,13 | -1,090000 | -0,993301 |
| 06 | 1438,38 \pm 2,61 | -1,101397 | -0,990489 |
| 07 | 1426,32 \pm 2,56 | -1,026466 | -0,986456 |
| 08 | 1430,77 \pm 1,87 | -1,043661 | -0,989894 |
| 09 | 1426,33 \pm 2,13 | -1,038520 | -0,983799 |
| Atividade média simples : 1430,94 \pm 1,72 kBq/g | | | |
| Atividade média ponderada : 1434,66 \pm 1,67 kBq/g | | | |

Tabela 2 Componentes da incerteza.

| Componentes da Incerteza | (%) |
|---|------|
| 1. estatística de contagem (contagem de fundo incluída) | 0,27 |
| 2. pesagem | 0,03 |
| 3. tempo morto | 0,14 |
| 4. tempo de resolução | 0,09 |
| 5. ajuste da curva de extrapolação | 0,12 |
| 6. decaimento | 0,12 |
| 7. fator $(1 + K)^2 / 2K$ | 0,20 |
| Incerteza combinada | 0,41 |

Tabela 3 Resultados e métodos

| | IPEN | | IRD | |
|--|----------|----------|----------|----------|
| | Método 1 | Método 2 | Método 1 | Método 3 |
| Concentração de atividade (kBq/g). em 15/06/88 às 00H00 TU | 1434,3 | 1434,1 | 1446,7 | 1434,7 |
| Incerteza combinada (kBq/g) | 4,7 | 4,0 | 10,0 | 5,9 |

Tabela 4 Probabilidade de emissão gama I_{γ} de 35,5 keV do ^{125}I .

| fonte | 01 | 02 | 03 | 04 | 05 |
|--|--------|--------|--------|--------|--------|
| I_{γ} | 0,0667 | 0,0680 | 0,0646 | 0,0674 | 0,0670 |
| I_{γ} médio : 0,0668 \pm 0,0013 | | | | | |

Tabela 5 Valores de I_{γ} encontrados na literatura e no presente trabalho.

| I_{γ} | Referência |
|--------------|-------------------------------------|
| 0,0667 | Table de Radionucléides-LMRI (1985) |
| 0,0651 | PTB - Ra - 16 (1984) |
| 0,0667 | NCRP Report nº 58 (1985) |
| 0,0668 | este trabalho |

REFERÊNCIAS

- 1 Trial comparison of activity measurements of a solution of ^{125}I . Rapport BIPM 88/2.
- 2 Table de radionucléides. Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants (1982).
- 3 X-Ray - X-Ray Coincidence Counting Method for the Standardization of ^{125}I and ^{197}Hg . Proceedings of a Symposium, Vienna SM-79/65 (1966).
- 4 Standardization of ^{125}I by Photon-Photon Coincidence Counting and Efficiency Extrapolation. Appl. Radiat. Isot., Vol. 38, Nº 10 (1987).
- 5 Coincidence Counting Corrections for Dead-time Loss and Accidental Coincidences. Int. J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 14, 143 (1963).
- 6 News from BIPM. P. Giacomo, Metrologia, Vol. 17 (1981).