

## RADIOISOTOPE MEASUREMENT SYSTEM

Villanueva Ruibal J.

Comisión Nacional de Energía Atómica Avda. del Libertador 8250 C.P.1429  
Capital Federal - República Argentina - e-mail: villanue@cae.cnea.gov.ar

### ABSTRACT

A radioisotope measurement system installed at L.M.R. (C.A.E.) of C.N.E.A. allows the measurement of nuclear activity from a wide range of radioisotopes. It permits to characterize a broad gamma of radioisotopes comprising diverse activity levels. Both the measurement hardware as the driving software have been developed and constructed at the Dto. I. y C. The work outlines the system's conformation and its operating concept, describes design characteristics, construction and the error treatment, comments assay results and supplies use advices. Measuring tests carried out employing different radionuclides confirmed the system performing satisfactorily and with friendly operation.

# SISTEMA DE MEDICIÓN DE RADIOISÓTOPOS

Villanueva Ruibal J.

Comisión Nacional de Energía Atómica Avda. del Libertador 8250 C.P.1429  
Capital Federal - República Argentina - e-mail: [villanue@cae.cnea.gov.ar](mailto:villanue@cae.cnea.gov.ar)

## RESUMEN

Un sistema de instrumentación instalado en el L.M.R. (C.A.E.) de la C.N.E.A. mide en amplio rango la actividad del decaimiento nuclear de radioisótopos. Permite caracterizar una amplia gama de radioisótopos de variados niveles de actividad. Tanto el hardware de medición como el software de operación han sido desarrollados y construidos en el Dto. I. y C. El trabajo esboza la conformación del sistema y su concepto de operación, describe características de diseño, construcción y del tratamiento del error, comenta resultados de ensayos y provee recomendaciones de uso. Pruebas de medición realizadas empleando diversos nucleidos comprobaron que el sistema funciona en forma satisfactoria y su operación es amigable.

## DESCRIPCIÓN DEL SISTEMA

Conformación. El sistema de medición de radioisótopos se compone básicamente de una cámara de ionización tipo pozo, un electrómetro electrónico digital y un software de operación. El modo de operación se describe con referencia a esta estructura básica.

Principio de medición. Para medir, el sistema utiliza una variante del método de sustitución. En esta variante se establece que la magnitud de comparación se mide “sólo una vez”, en lugar de “con cada vez”. El valor de comparación se mide en el momento de la calibración y este resultado se guarda en una tabla que se consulta con cada medición posterior que el sistema realiza. La elección se funda en el riesgo que involucra manipular fuentes radiactivas de referencia sustituyendo en relación uno a uno con cada medición de la variable incógnita.

Construcción. El hardware instalado consiste en dos cadenas similares denominadas Pozo1 y Pozo2. Hay una cámara pozo y un electrómetro por cada cadena, pero ambas comparten el mismo software. Es decisión del operador elegir cual usar en una medición particular. Las cámaras tipo pozo poseen las siguientes características: Diámetro exterior total 170 mm, largo total 600 mm, diámetro del pozo 68 mm, largo del pozo 460 mm, material del pozo acero inoxidable (0,9 mm), material de los electrodos aluminio, gas de llenado argón, presión del gas 4 Kg/cm<sup>2</sup> (un pozo) y 6 Kg/cm<sup>2</sup> (el otro), tensión de polarización 190V. Los electrómetros digitales poseen 6 décadas de medición con 10 pA en la escala más sensible, con resolución de 1 fA. La base de tiempo en la medición de corriente puede seleccionarse en 1s, 10s, ó 100s. Una conexión serie RS-232 permite su

operación desde una PC. El software corre en el sistema operativo D.O.S. y fue desarrollado bajo la idea de operación por lotes. Constituye la interfase hombre-máquina y guía al operador sobre acciones a tomar e información a suministrar previo a la adquisición de los datos de medición. Por último calcula e informa el valor medido sustanciado en memoria en forma de archivo, con opción de salida por impresora.

Concepto. El conjunto cámara pozo y electrómetro entrega una corriente eléctrica resultante de la interacción del decaimiento nuclear del radioisótopo que se mide. Éste se ubica dentro de la cámara pozo, la cual actúa como detector de radiación. En cada medición el sistema determina el cero inicial, el valor de la incógnita, y el cero final. El promedio de los ceros se resta del valor incógnita medido. La corriente que entrega el conjunto cámara pozo y electrómetro, con un nucleido incógnita alojado en el pozo, se compara con una corriente previamente medida e ingresada en una tabla de referencias. Esta corriente fue ingresada en la tabla en el momento de la calibración y corresponde a un nucleido de referencia del mismo tipo del nucleido que se mide. Con anterioridad a las mediciones, en la tabla de referencias se registran líneas que contienen características de nucleidos a emplear como tales. Los datos ingresados identifican: nombre del nucleido, vida media, número de serie, fecha de fabricación, actividad nominal en esa fecha, y la incertidumbre expresada como error relativo porcentual especificado sobre esta actividad. Cada vez que el sistema se calibra para un nucleido de referencia particular, también se ingresa: la fecha de calibración, la corriente que entrega el conjunto cámara pozo y electrómetro cuando se encuentra excitado con el nucleido referencia, el error de indeterminación de esa corriente, y un campo de validación (si/no) que habilita el uso de la línea. Cuando se mide, para calcular la actividad del nucleido incógnita, el sistema multiplica la actividad que posee el nucleido referencia en la fecha de calibración (de la actividad nominal registrada en la fecha de fabricación calcula su decaimiento a la fecha de calibración) por la relación entre la corriente incógnita (actualmente medida) y la corriente de referencia (medida e ingresada en la tabla en la fecha de calibración). El software efectúa los cálculos en forma transparente al operador y guarda el resultado en memoria con opción de salida por impresora. La propagación del error hacia la variable de salida se computa como la suma de los errores relativos de la actividad nominal de referencia, y de las corrientes incógnita y referencia medidas.

Consideración sobre las corrientes medidas. Tanto la corriente debida al nucleido incógnita como la debida al nucleido de referencia deben medirse con el mismo sistema pozo y en la misma escala del electrómetro. Para minimizar el error deberían emplearse referencias tales que sus actividades suministren, en las escalas del electrómetro donde se emplean, la mayor corriente posible sin saturar la escala. Según el método de sustitución, no es relevante conocer la exacta calibración de ganancia de corriente del conjunto cámara pozo y electrómetro, pero impone que la ganancia tenga buena estabilidad y adecuada linealidad (características que son propias del sistema implementado). La adquisición y el procesamiento de los datos debe realizarse con adecuada resolución para hacer mínimo el error de sesgo.

Consideración sobre el tiempo de medición. El tiempo de medición corresponde en su mayor parte a la toma de los datos. Actúa en forma inversa sobre la magnitud del error por fluctuación aleatoria de la señal medida y resulta crítico en mediciones de actividades bajas. Para disminuir el error por fluctuación estadística en bajas corrientes (en el orden de las decenas o centenas de femto-Ampere) se debe aumentar el número de muestras a tomar ó el tiempo de integración del electrómetro. El menor tiempo de medición que se elige debe conciliar un compromiso entre la magnitud de la actividad a medir, el tipo de radioisótopo de que se trata, y el error máximo que se decide aceptar. Para conducir una medición de actividad, el software presenta cuatro archivos directores de entre los cuales se puede elegir uno. Estos establecen el tiempo de medición en 38m, 25m, 12m ó 6m (se diferencian en el número de muestras que toman y en la base de tiempo del electrómetro que solicitan).

Consideración general sobre el error del sistema. En general, en el error de medición intervienen términos que tienen su origen en el límite de precisión del sistema, su pérdida de calibración con el tiempo, y en la inestabilidad de medición ante fenómenos externos. Reconoce las siguientes causas: El principio de funcionamiento. No-linealidad de sensores y amplificadores. La resolución en la presentación digital de los datos y el truncamiento numérico de cálculo. No-estabilidad temporal del hardware de medición en el lapso entre calibraciones. No-estabilidad en condiciones ambientales de referencia: presión, temperatura, humedad. Perturbaciones del ambiente en el instante de la medición (vibraciones, ruido eléctrico, compatibilidad electromagnética y variaciones en el fondo de radiación gamma) y el error estadístico de variables medidas que contienen componentes aleatorias. El error de medición se compone de un término que informa el sistema y otros que deben ser ponderados por el operador de medición.

Planeamiento. La aplicación de un programa de metrología permite trazar la precisión del sistema, y establecer la frecuencia entre calibraciones con nucleidos de referencia. Esta se debe establecer sobre la base de experiencia de mantenimiento y uso.

Recomendación de uso. Para trabajar con el sistema, el operador de medición debe reunir un adecuado conocimiento de manejo, habilidad para manipular las fuentes que se miden y capacidad para discernir acerca de los valores resultantes de la medición. También debe considerar atentamente las siguientes recomendaciones para evitar cometer errores que pudieran ser importantes. a) Al nivel de la calibración, poner particular atención al ingresar datos en la tabla de referencias (edición) para evitar asientos erróneos o corromperla. b) Al nivel de la medición, la interfase hombre-máquina solicita el ingreso de cuatro datos: El pozo que se usa, el nombre del nucleido que se mide, el número de serie de la referencia, y la fijación de la base de tiempo del electrómetro. Debería responder con acierto acerca de ellos para evitar que se incluyan errores sobre los cuales el sistema no tiene capacidad de detección. No consiste tanto en el ingreso fallido de los datos, ya que el sistema prueba su consistencia con los existentes en la tabla y si no concuerdan interrumpe la medición, sino en que "lo que se declara sea en definitiva lo que se hace". Sobre esto, dos aspectos importantes consisten en que,

si se declara el uso de un determinado número de pozo sea éste el que se usa y no otro, y si se declara la medición de un determinado nucleido, se utilice una referencia del mismo tipo y no de otro. En cuanto al número de serie de la referencia, si el sistema no encuentra el dato simplemente detiene la medición, pero como la tabla admite múltiples asientos de un mismo tipo de nucleido con distintos números de serie, debería elegirse la referencia que conduzca a medir con el menor error. Finalmente, la fijación incorrecta de la base de tiempo del electrómetro constituye una situación anormal que el operador rápidamente llegaría a detectar.

Pruebas realizadas. Pruebas de calibración y medición realizadas empleando nucleidos disponibles en el Dto. I. y C. y en el L.M.R permitieron comprobar que el sistema funciona en forma satisfactoria y que su operación es amigable y robusta. La tabla siguiente presenta veinticuatro resultados de mediciones que se han realizado sobre trece tipos distintos de nucleidos, mostrando los errores totales (incluyendo la referencia) y propios (solo del sistema) que se obtuvieron. Algunas mediciones fueron hechas con el archivo director N (38min) y otras con el archivo director U (6min). Se utilizó el Sistema de Pozo número 2. La primera fila de la tabla corresponde a la medición del nucleido Ra-226 NSerie 125-00 de considerable actividad ( $A_c=370,64$  kBq) usándose a sí mismo como referencia (medido en distinta fecha a la de calibración). Se usó el archivo director U(6m) y el informe de medición es B9133346. El error total reportado por el informe ( $E_t\%=1,71$ ) es discreto ya que se usó poco tiempo de medición por tratarse de considerable actividad. Se podría haber mejorado el error empleando el archivo director N(38m). La segunda fila pertenece al nucleido Ra-226 NSerie 548-171-3 de baja actividad ( $A_c=19,24$  kBq) usándose a sí mismo como referencia (medido en distinta fecha a la de calibración). Se usó el archivo director N(38m) y el informe de medición es AD162202. El error total reportado por el informe ( $E_t\%=2,87$ ) es discreto ya que por tratarse de baja actividad se usó el archivo director del mayor tiempo de medición. La tercera fila corresponde a la medición del nucleido Am-241 NSerie B1590 de considerable actividad ( $A_c=355,86$  kBq) usándose a sí mismo como referencia (medido en distinta fecha a la de calibración). El error total reportado por el informe ( $E_t\%=6,6$ ) es discreto por haberse medido a modo de prueba con el archivo director U(6m) (informe de medición B4141408). Se destaca la menor ganancia del sistema al Am-241 (0,535 fA/kBq) comparada a la ganancia para el Ra-226 (9,6 fA/kBq) con motivo de la menor energía del decaimiento nuclear (una fracción de la misma incide significativamente en la generación de corriente eléctrica en la cámara pozo). Como se esperaba, se observa que la ganancia de corriente del sistema difiere con el tipo de nucleido, siendo máxima para el Co-60, Na-22 y Y-88, en el orden de 13 fA/kBq y mínima para el Cd-109 de solo 0,059 fA/kBq. Ganancias de valor intermedio corresponden al Ba-133 (3 fA/kBq), Cs-137 (3,5 fA/kBq), Mn-54 (4,8 fA/kBq), Eu-152 (7 fA/kBq) y Ra-226 (9,6 fA/kBq). La ganancia del sistema definida para una escala del electrómetro (corriente de referencia dividida por la actividad nominal especificada y decaída a la fecha de calibración) difiere con las fuentes de un mismo tipo usadas como referencia debido a las discrepancias de especificación.

nucleido	código	En%	Fecha Cal.	Ac(kBq)	Iref(pA)	fA/kBq	Fecha Med.	A(kBq)	Et%	Ep%	AD
Ra-226	125-00	1,00	09/11/2004	370,64	3,396	9,163	10/11/2004	373,1	1,71	0,71	U
Ra-226	548-171-3	0,02	07/10/2004	19,24	0,1847	9,600	14/10/2004	19,58	2,87	2,85	N
Am-241	B1590	1,70	12/10/2004	355,86	0,1904	0,535	05/11/2004	353,2	6,6	4,9	U
Am-241	104-00/8321	0,25	11/11/2004	315,49	0,1654	0,524	11/11/2004	311,9	7,34	7,1	U
Cs-137	130-00	1,00	13/12/2004	180137	629,9	3,497	13/12/2004	180100	1,02	0,02	N
Cs-137	75-00/6050	0,50	13/12/2004	86465	317,6	3,673	13/12/2004	86470	0,55	0,05	N
Cs-137	5-02/6030a	0,67	13/12/2004	580,52	2,024	3,487	13/12/2004	580,5	1,35	0,68	N
Cs-137	B3487	1,30	13/12/2004	229,38	0,8248	3,596	13/12/2004	229,4	2,62	1,32	N
Cs-137	4-00/6004	0,90	14/12/2004	162,42	0,5312	3,271	14/12/2004	162,4	3,18	2,28	N
Cs-137	43-00/6020	0,60	14/12/2004	77,66	0,2722	3,505	14/12/2004	77,65	3,47	2,87	N
Eu-152	102-00/7320a	1,70	02/11/2004	6237	44,780	7,180	03/11/2004	6227	1,98	0,78	U
Eu-152	92-00/7317b	1,70	08/11/2004	1487	10,410	7,001	08/11/2004	1490	1,95	0,25	U
Ba-133	13-00/5401e	1,00	27/10/2004	393,33	1,1580	2,944	28/11/2004	393,7	2,43	1,43	U
Ba-133	B2449	1,60	12/10/2004	69,22	0,2104	3,040	12/10/2004	69,76	4,54	2,94	N
Co-60	19-01/3029	1,50	25/10/2004	31,81	0,4238	13,323	28/10/2004	31,63	4,81	3,31	U
Co-60	B5465	0,70	12/10/2004	11,21	0,1501	13,390	12/10/2004	11,42	5,41	4,71	N
Na-22	136-00	1,07	11/11/2004	166457	2166,0	13,012	11/11/2004	166500	1,1	0,04	U
Cs-134	133-00	1,03	01/11/2004	33840	323,60	9,563	01/11/2004	33950	1,09	0,06	U
Cs-134	74-00/5805	1,00	02/11/2004	693,5	6,6010	9,518	02/11/2004	692,6	1,39	0,39	U
Cd-109	127-00	1,03	26/10/2004	137628	8,1710	0,059	28/10/2004	136900	1,29	0,26	U
Mn-54	134-00	1,07	03/11/2004	28499	138,10	4,846	03/11/2004	28490	1,22	0,15	U
Co-57	128-00	1,03	10/11/2004	127771	149,50	1,170	10/11/2004	127700	1,13	0,1	U
Zn-65	100-00/2501	0,41	25/10/2004	18,95	0,0599	3,160	28/10/2004	17,66	19,5	19	U
Y-88	138-00	1,00	12/11/2004	37926	504,80	13,310	12/11/2004	37670	1,03	0,03	U

#### Nomenclatura.

En%: Incertidumbre nominal porcentual en la actividad del nucleido, en la fecha de fabricación.

Fecha Cal.: Fecha de calibración del sistema con el nucleido referencia.

Ac(kBq): Actividad del nucleido referencia en la fecha de calibración.

Iref(pA): Corriente de referencia en pico-ampere del nucleido referencia.

fA/kBq: Ganancia de corriente de la cadena para ese tipo de nucleido.

Fecha Med.: Fecha de medición del nucleido referencia.

A(kBq): Actividad medida del nucleido referencia en la fecha de medición.

Et%: Error relativo porcentual total de la medición (Incertidumbre de la referencia más error propio).

Ep%: Error relativo porcentual propio del sistema (no incluye la incertidumbre de la referencia).

AD: Archivo director empleado en la medición.

Pruebas del montaje de la muestra en el porta-muestras. Para determinar la componente de error causada por la incertidumbre de montaje de la muestra en el porta-muestras, se tomaron mediciones de una muestra de Ra-226 alojada en tres posiciones distintas de la cámara pozo: centrada axial y radialmente, descentrada con 46mm de excentricidad axial, y descentrada con 20mm de excentricidad radial. Se pudo calcular la sensibilidad paramétrica del error con respecto a cada eje, resultando 0,16%/mm para la excentricidad radial y -0,051%/mm para la excentricidad axial. Un cálculo simple permite estimar que para una excentricidad de 1mm en cada eje se debería agregar 0,2% de error por incertidumbre de geometría. Experiencia futura que se logre sobre habilidad de uso y mantenimiento del sistema permitirá mejorar la estimación que se haga sobre esta y otras componentes del error.

Tratamiento del error. El error de medición se compone de factores que se comentan a continuación. El término principal del error es informado por el sistema sobre la base de datos de la tabla y de datos de la medición actual. Otros términos del error deben ser ponderados por el operador de medición. El sistema calcula e informa el error porcentual relativo a partir de lo siguiente:

- La incertidumbre del nucleido referencia especificada por el fabricante, que encuentra en la tabla de referencias. Es registrada en la tabla por el operador de calibración con anterioridad a las mediciones.
- La incertidumbre de la corriente de referencia, que encuentra en la tabla de referencias. También ingresada en la tabla en el momento de la calibración.
- La incertidumbre de la corriente indicada (desviación estándar de la media estadística), que obtiene de la medición actual con el nucleido incógnita.

Ponderación del error. El operador de medición debe ponderar componentes de error que se deben agregar al informado por el sistema, en atención a los siguientes aspectos:

- El error de linealidad global del hardware (cámara pozo más electrómetro).
- El error por no-estabilidad temporal del hardware en el plazo entre calibraciones (debe basarse en experiencia y en vinculación con el plan de calibraciones que establezca el Programa de Metrología).
- El error por resolución en la presentación visual de la corriente medida. Dependerá de la zona de la escala en que se mida con el electrómetro.
- El error por incertidumbre en la geometría. Estará basado en experiencia y considerará la falta de precisión en la colocación del nucleido en el porta-muestras. Un estimador para esta componente de error fue determinado experimentalmente. Podrá ser utilizado en primera instancia y modificado sobre la base de la experiencia de uso que se alcance.
- Estimación de términos que surjan cuando no se apliquen las recomendaciones para medir con el menor error (si no se usa la misma escala del electrómetro para medir la referencia y la incógnita, si se realiza una comparación entre pozos, etc).

Error del electrómetro por la no-estimación completa de la carga eléctrica.

El electrómetro utilizado en la medición de la corriente introduce un error particular que debe ser estimado. La primera etapa del electrómetro consiste en un amplificador electrométrico operando en modo trans-resistencia realimentado con un resistor de rango de alto valor óhmico ( $10^{10}$  ohm en el rango más sensible) y un capacitor en paralelo (160 pF). La carga eléctrica que ingresa al circuito puede calcularse con la ecuación:  $Q_T = C_T \cdot [V_2 - V_1] + (1/R_T) \cdot \int V_o(t) \cdot dt = q_a + q_b$

Siendo  $V_1 = v(t_1)$ ,  $V_2 = v(t_2)$ , y la integral definida en el lapso de medición  $t_1..t_2$ .

El electrómetro integra durante la base de tiempo (1s, 10s, ó 100s) la tensión de salida de la primera etapa y provee una indicación digital final que es proporcional al promedio de esta tensión. Responde al término de carga  $q_b$  al integrar en la base de tiempo la corriente que atraviesa el resistor de rango y

desprecia el término  $q_a$  vinculado a las tensiones inicial y final sobre el capacitor de realimentación. El error es tanto mayor cuanto, en la corriente de entrada, es mayor el valor pico de la componente alterna de fluctuación con relación al valor medio, y cuanto menor es el tiempo de integración. Tiene carácter aleatorio al no ser predecibles las tensiones del capacitor inicial y final del lapso de integración (variación aleatoria de la componente alterna de la señal). Este modo de operación es aceptable cuando la corriente medida es estacionaria y de baja fluctuación. La acumulación de carga en el capacitor en el intervalo de integración es entonces pequeña y el error de poca influencia por ser  $V_2 \approx V_1$ . Medir bajo este concepto corriente variable de mayor fluctuación (pulsos de la interacción del decaimiento nuclear de un radioisótopo en una cámara pozo, con la sola imposición que se trate de tasas en régimen estacionario) requiere analizar la magnitud del error. El error es función de los parámetros de la señal (tasa de los pulsos y fase de ataque de los pulsos sobre el lapso de medición) y de los parámetros del circuito (lapso de medición y valor de la constante de tiempo del polo R-C). Cálculos efectuados para la escala más sensible del electrómetro (base de tiempo: 100s, constante : 1,6s) permiten estimar que con una tasa de pulsos de 1 c/s el error máximo de este tipo es de 0,5%. La tasa preliminarmente probada sería del orden de la menor que con efecto significativo se produciría midiendo un radioisótopo con actividad de 10 kBq.

## CONCLUSIONES

La C.N.E.A. dispone de un sistema de medición de amplio rango para medir actividad del decaimiento nuclear de radioisótopos, desarrollado y construido en el Dto. I. y C. e instalado en el L.M.R. (C.A.E.), que permite caracterizar una amplia gama de radioisótopos de variados niveles de actividad

Pruebas llevadas a cabo realizando mediciones sobre una gama de trece tipos distintos de nucleidos permitieron comprobar que el sistema mide en forma satisfactoria y que su operación es amigable y robusta.

Mediante un programa de metrología basado en experiencia de mantenimiento y uso es posible realizar un seguimiento de su precisión y establecer la frecuencia entre calibraciones.