



# PARTICIPAÇÃO DO LNMRI NA COMPARAÇÃO-CHAVE DO BIPM PARA O $^{177}\text{Lu}$ .

Eduarda Rezende<sup>1</sup>, Akira Iwahara<sup>2</sup>, Carlos José da Silva<sup>3</sup>, Luiz Tauhata<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Instituto de Radioproteção e Dosimetria/Comissão Nacional de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, Brasil, eduarda@ird.gov.br

<sup>2</sup> Instituto de Radioproteção e Dosimetria/Comissão Nacional de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, Brasil, iwahara@ird.gov.br

<sup>3</sup> Instituto de Radioproteção e Dosimetria/Comissão Nacional de Energia Nuclear, Rio de Janeiro, Brasil, carlos@ird.gov.br

<sup>4</sup> Fundação Carlos Chagas Filho de Amparo à Pesquisa do Rio de Janeiro- IRD/CNEN, tauhata@ird.gov.br

**Resumo:** Como laboratório nacional, o LNMRI participou da comparação-chave do BIPM para o  $^{177}\text{Lu}$ , onde uma solução deste radionuclídeo foi calibrada por laboratórios de vários países visando estabelecer um valor de referência. No Brasil foram utilizados os métodos primários de coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$  e de anti-coincidência  $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma(\text{NaI}(\text{Tl}))$ . Os resultados apresentaram uma concordância de 0,4% e 1%, respectivamente em relação ao valor de referência da calibração.

**Palavras-chave:** coincidência, anti-coincidência,  $^{177}\text{Lu}$ , comparação-chave.

## 1. INTRODUÇÃO

No Brasil, o Instituto de Radioproteção e Dosimetria, através do seu Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI) é o laboratório designado pelo Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial para cumprir a missão de manter e disseminar padrões de radioatividade em todo o Brasil. Para isso o LNMRI dispõe, nos seus laboratórios, de sistemas de medições primárias, como coincidência e anti-coincidência, para a padronização de atividade de inúmeros radionuclídeos com diferentes tipos de decaimento [1,2].

Para avaliar a capacidade de medição dos laboratórios nacionais, são analisados os desempenhos por *Comparações-chaves (Key-Comparisons Data Base-KCDB)* organizadas pelo BIPM. Essas comparações são exercícios que visam estabelecer valores de referência de grandezas físicas, que servem como base para a garantia da coerência das medições realizadas internacionalmente [1].

Como laboratório nacional, o LNMRI participou da comparação-chave para estabelecer a rastreabilidade internacional para o  $^{177}\text{Lu}$ .

Participaram desta comparação-chave os seguintes laboratórios nacionais: o ANSTO da Austrália, IRMM da Comunidade Européia, LNHB da França, PTB da Alemanha, ENEA da Itália, POLATOM da Polônia, IFIN-HH da Romênia, NMISA da África do Sul, NPL do Reino Unido e NIST dos Estados Unidos.

O  $^{177}\text{Lu}$  é um radionuclídeo de meia-vida de 6,647 dias e decai através da emissão de partículas beta para três níveis excitados, e atingem a estabilidade através de seis transições gama diferentes, com energias de 71 a 312 keV, tornando-se Háfnio-177 ou  $^{177}\text{Hf}$  [3]. Tem sido estudado

como agente de terapia para diferentes tipos de câncer [4]. O esquema de decaimento está na figura 1.

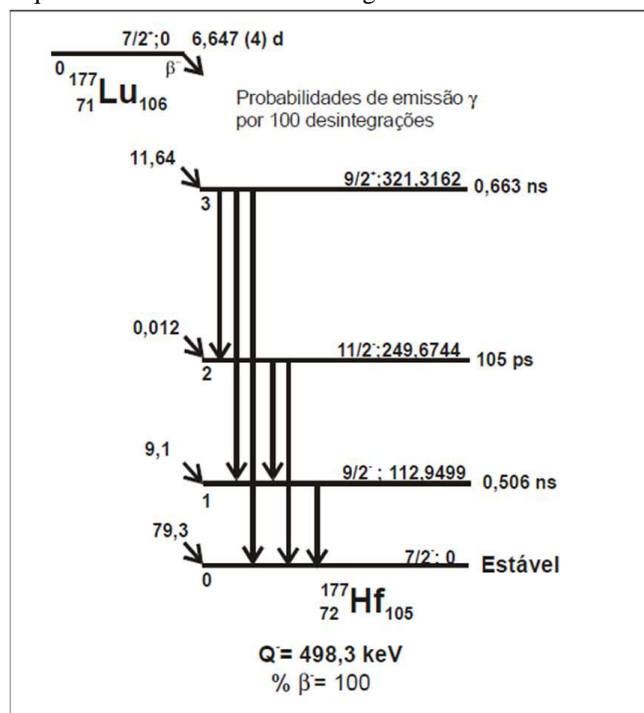


Figura 1: Esquema de decaimento do  $^{177}\text{Lu}$  [3].

## 2. OBJETIVO

Participar da comparação-chave do BIPM para o  $^{177}\text{Lu}$ , com bons resultados e estabelecer a rastreabilidade de suas medições ao laboratório internacional.

## 3. MÉTODOS

O BIPM enviou para cada laboratório participante uma solução de  $^{177}\text{Lu}$  e cada laboratório enviou um resultado com uma incerteza associada da calibração.

A composição química da solução fornecida pelo BIPM ao LNMRI foi de  $20 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$  de  $\text{Lu}^{+3}$  como  $\text{LuCl}_3$  em  $1\text{N HCl}$  com concentração de atividade aproximada: de  $800 \text{ kBq}\cdot\text{g}^{-1}$  em 15/05/2009 às 9h UTC.

As fontes, contendo o radionuclídeo de interesse, foram obtidas mediante a diluição da solução original com água destilada até atingir a atividade por unidade de volume, apropriada para a realização das medições. A seguir, usando

o método de pesagem diferencial em uma balança **METTLER TOLEDO** modelo **AX205** no laboratório de preparação de fontes com as condições ambientais entre  $19,0\text{ }^{\circ}\text{C}$  e  $21,0\text{ }^{\circ}\text{C}$  para temperatura e entre  $49\%$  e  $51\%$  para umidade relativa do ar, as fontes foram preparadas para calibração.

As geometrias usadas foram as fontes finas para o método de coincidência e frasco de cintilação para o método de anti-coincidência, ilustradas na figura 2.



Figura 2.a - Fonte fina.



Figura 2.b - Frasco de cintilação.

A calibração foi feita pelos métodos primários de coincidência e de anti-coincidência.

Para a calibração foram usados métodos absolutos, que permitem a determinação da atividade de uma amostra através das taxas de contagem observadas, necessitando apenas, em alguns casos, do conhecimento prévio do esquema de decaimento do radionuclídeo. [5,6] Os métodos foram: coincidência  $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$  e anti-coincidência  $4\pi\beta(\text{LS})-\gamma(\text{NaI}(\text{TI}))$ .

O método de contagem em coincidência  $4\pi\beta-\gamma$  usa o arranjo convencional com um contador proporcional (PC) à gás para contagem do canal beta e um iodeto de sódio **NaI(Tl)** para contagem do canal gama. Um terceiro canal de contagem registra os eventos de coincidências entre os dois canais, resultando no canal de coincidência. O gás do detector é uma mistura de 90% de argônio mais 10% de metano e conhecido comercialmente como *P10*, operando à pressão normal. [7,8]

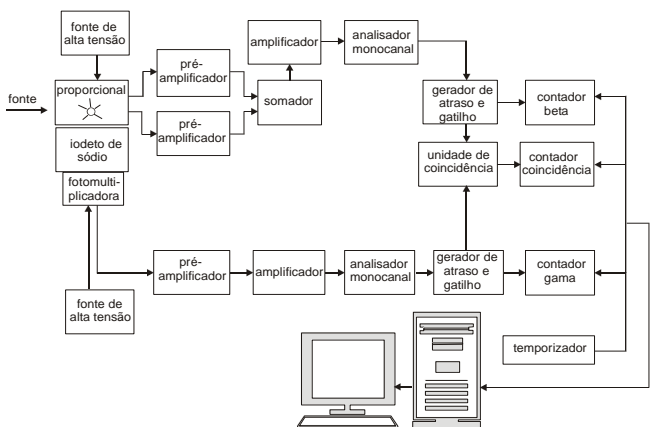


Figura 3 - Diagrama de blocos do método de contagem em coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ . [7]

A instrumentação para o uso do método de anti-coincidência foi composta por um detector com cintilador

líquido no canal beta e um de **NaI(Tl)** no canal gama. O sistema de calibração possui um gerador de tempo morto **MTR2**, gerador de tempo vivo **MI-2**, discriminador do canal gama **MI-3** construídos pelo laboratório **LNHB** da França [7].

Na contagem em anti-coincidência, os raios gama não correlacionados às partículas beta são contados e a taxa de contagem no canal de coincidência pode então ser obtida pela subtração entre a taxa de contagem gama total e a taxa de contagem não correlacionada.

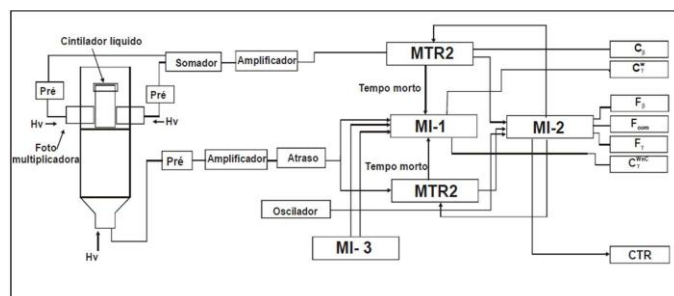


Figura 4 - Diagrama de blocos do método de contagem em anti-coincidência  $4\pi\beta-\gamma$ . [7]

## 4. RESULTADOS

### 4.1 Resultado da Calibração do LNMRI

A atividade por unidade de massa obtida pelos dois métodos de contagem bem como as incertezas associadas são apresentadas na Tabela 1. Na Tabela 2 são apresentados os componentes das incertezas associados aos dois métodos de medição. Os resultados são para data de referência de 01/05/2009 as 12:00 h UTC.

Tabela 1. Concentração de atividade da solução de  $^{177}\text{Lu}$  determinada pelos dois métodos de medição.

Método de contagem	Concentração de atividade por unidade de massa ( $\text{kBq g}^{-1}$ )	Incerteza combinada (%) $k=2$
Coincidência	3274,9	0,94
Anti-coincidência	3253,3	0,68

Tabela 2. Componentes de incerteza (em %) associados aos dois métodos de medição.

Componente de incerteza devido a	Contagem em coincidência	Contagem em anti-coincidência
Extrapolação da curva	0,07	0,06
Estatística de contagem	0,24	0,26
Tempo vivo	-	0,01
Meia-vida	0,19	0,13
Radiação de fundo	0,15	0,02
Massa	0,05	0,05
Tempo morto	0,11	-
Tempo de resolução	0,08	-
Ajuste do retardo relativo beta-gama	0,28	-
Incerteza combinada ( $k = 1$ )	0,47	0,34

A análise do espectro gama obtido por um detector de germânio não evidenciou a ocorrência de impurezas radionuclídicas como o  $^{177}\text{Lu}^{\text{m}}$  (meia-vida de 155 d) acima do limite de detecção do sistema de medição.

## 4.2 Resultado da Comparação-chave

O BIPM divulgou os resultados da *Comparação-chave (key-comparison)* do  $^{177}\text{Lu}$ . Cada laboratório participante enviou um resultado com uma incerteza associada da calibração de uma solução de  $^{177}\text{Lu}$  enviada pelo BIPM. Os resultados não estão relacionados aos nomes dos laboratórios para manter a confidencialidade da comparação, até a divulgação do resultado final pelo BIPM.

O resultado enviado pelo Brasil foi uma média entre os resultados obtidos pelos métodos de contagem em coincidência e contagem em anti-coincidência do LNMRI e o resultado do método de contagem em coincidência do IPEN. Para alguns radionuclídeos em que o IPEN faz a calibração, por tradição, o LNMRI considera os seus resultados para a composição do resultado final do laboratório nacional.

Os resultados estão apresentados na figura 5. As barras de incerteza correspondem a incerteza padrão combinada para cada valor correspondente. A linha sólida representa o valor de referência da comparação (CRV) proposto, de  $3,288 \text{ MBq}\cdot\text{g}^{-1}$  e a linha tracejada representa a incerteza padrão combinada do CRV. O CRV é a média de todos os resultados enviados pelos laboratórios participantes.

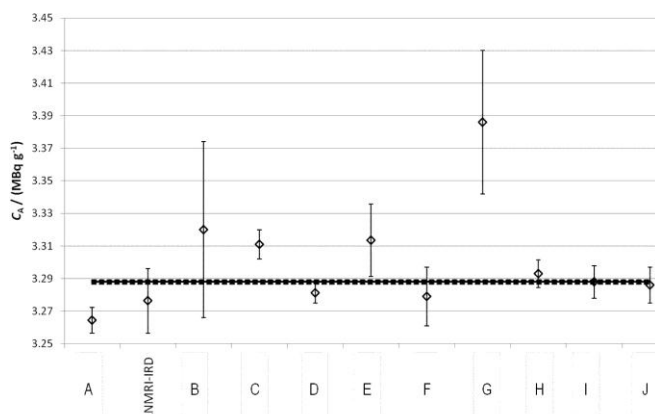


Figura 5 - Resultado parcial da comparação-chave do  $^{177}\text{Lu}$  promovida pelo BIPM.

O resultado enviado pelo Brasil ficou com uma diferença menor que 2% em relação ao CRV. Como a barra do valor da incerteza do resultado incluiu o CRV, isto indica que os valores são estatisticamente iguais.

## 5. DISCUSSÃO

Os resultados mostraram uma boa concordância entre os dois métodos utilizados. Os resultados da atividade por unidade de massa obtidos pelo método de coincidência de  $3274,9 \text{ kBq}\cdot\text{g}^{-1} \pm 0,94\%$  e anti-coincidência de  $3253,3 \text{ kBq}\cdot\text{g}^{-1} \pm 0,68\%$  mostraram uma concordância de 0,4% e 1%, respectivamente, em relação ao valor de referência  $3288 \text{ kBq}\cdot\text{g}^{-1}$  adotado pela *Comparação-chave* do BIPM.

A incerteza estimada para o método de anti-coincidência (0,68%) é menor em relação à da coincidência (0,94%). Isso era esperado uma vez que alguns componentes como o

tempo morto, tempo de resolução e ajuste do retardo relativo beta-gama são eliminados no método de anti-coincidência.

## 6. CONCLUSÕES

O LNMRI obteve um resultado com uma boa concordância em relação ao valor de referência da comparação. Com a participação na comparação-chave foi possível estabelecer a rastreabilidade do LNMRI ao BIPM para o radioisótopo  $^{177}\text{Lu}$ .

## REFERÊNCIAS

- [1] REZENDE, E.A. JUNIOR, S.H. TAUHATA, L. *Estudo Metrológico da Atividade dos Radionuclídeos*. Trabalho de conclusão de curso. IFRJ/Nilópolis. 2009.
- [2] LNMRI. Disponível em: <<http://www.ird.gov.br/LNMRI/lnmri.html>>. Acesso em 26/05/2011.
- [3] *Tabela de Radionuclídeos –  $^{177}\text{Lu}$* . LNHB. Disponível em: <[http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/Nuclides/Lu-177\\_tables.pdf](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Lu-177_tables.pdf)> Acesso em 11/05/2009.
- [4] IWAHARA, A. DA SILVA, C.J. REZENDE, E.A. TAUHATA, L. Padronização primária de uma solução de  $^{177}\text{Lu}$ . 2009. 5º Congresso Brasileiro de Metrologia. Salvador, Bahia.
- [5] NCRP. 1985. *A handbook of radioactivity measurements procedures, Report N° 58*. (NCRP Publications, Bethesda, MD 20814).
- [6] NCRP. 1985. *A handbook of radioactivity measurements procedures, Report N° 58*. (NCRP Publications, Bethesda, MD 20814).
- [7] DA SILVA, Carlos José. Implementação de um Sistema de Anti-coincidência  $4\pi \text{ NaI(Tl)-CL}$  com Cronometragem em Tempo Vivo e Tempo Morto Extendível. Tese de Doutorado. 2008. COPPE/UFRJ.
- [8] IWAHARA, A. DA SILVA, C.J. REZENDE, E.A. TAUHATA, L. *Padronização primária de uma solução de  $^{177}\text{Lu}$* . 2009. 5º Congresso Brasileiro de Metrologia. Salvador, Bahia.