

Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液活度测量的标准化研究

钟建国, 弓全胜, 黄清泉, 姜金岭

(中国药品生物制品检定所, 北京 100050)

摘要: 为了确保含¹⁸⁸Re 放射性药品用药安全有效, 本工作对使用活度计测量 Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液活度的方法进行了标准化研究。采用 3 家实验室的 4πβ 液闪、4πβ-γ 符合测量装置共 4 套独立测量系统对 Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液的活度进行了定值; 再利用已知活度的标准源, 对使用活度计测量 Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液活度的方法进行了标准化研究, 确定了测量条件, 并在 3 个地区的 10 台活度计上进行了活度测量比对试验。结果表明, 利用 CRC 系列活度计对 Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液活度的测量结果与标准值的偏差均在 ±3% 以内。因此, 在确定的测量条件下, 活度计适宜于测量 Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液的活度。

关键词: Na¹⁸⁸ReO₄ 溶液; 活度测量; 标准化

中图分类号: TL84; TQ463.7 文献标志码: A 文章编号: 1000-7512(2008)03-0173-04

Study on the Standardization for the Radioactivity Measurement for Sodium Perrhenate ¹⁸⁸Re Solution

ZHONG Jian-guo, GONG Quan-sheng, HUANG Qing-quan, JIANG Jin-ling

(The National Institute for the Control of Pharmaceuticals and Biological Products, Beijing 100050, China)

Abstract: In order to determine the radioactivity of ¹⁸⁸Re radiopharmaceuticals accurately with dose calibrators, and ensure the safety and efficacy of the ¹⁸⁸Re radiopharmaceuticals, the standardization for the radioactivity measurement of sodium perrhenate ¹⁸⁸Re solution with dose calibrators were studied, in which 4π liquid scintillator and 4πβ-γ coincidence method were used to determine the values of radioactivity for the sodium perrhenate ¹⁸⁸Re Solution standard source with four experimental set-ups in three laboratories, then the dose calibrators were calibrated with the standard source, and the effect of the type of dose calibrator, the container of the standard source, and the volume of the solution were studied systematically, at last the comparative test was carried out among 10 different dose calibrators in three cities. The results showed that the values of CRC series dose calibrators were all in coincidence within ±3%. In conclusion, having been calibrated by standardization, the CRC series dose calibrators can be used to accurately determine the radioactivity of sodium perrhenate ¹⁸⁸Re solution.

收稿日期: 2008-03-16; 修回日期: 2008-06-27

基金项目: 科技部发展司科兴贸项目资助(K2000-20-39)

作者简介: 钟建国(1968~), 男(汉族), 湖南邵阳人, 副研究员, 放射性药品检验和研究

通信作者: 姜金岭(1940~), 男(汉族), 研究员, 放射性药品检验和研究, 课题负责人

Key words: $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ solution; radioactivity measurement; standardization

^{188}Re 具有比较理想的核性质和化学性质,而且可以通过 ^{188}W - ^{188}Re 发生器制备,是一种很有前景的治疗用放射性核素。目前, ^{188}W - ^{188}Re 发生器已在我国研制成功^[1],含 ^{188}Re 治疗用放射性药物也在广泛地研制和申报中。 ^{188}Re 同时发射 β 粒子和 γ 光子,在利用活度计测量 ^{188}Re 活度的过程中,容器种类、样品形态和取样量以及几何位置等多种因素均对测量结果产生影响。治疗用放射性药品的活度与其用药安全性和有效性直接相关,为了准确测定 ^{188}Re 的活度,确保含 ^{188}Re 放射性药品用药安全、有效,本工作拟采用 $4\pi\beta$ 液闪、 $4\pi\beta$ - γ 符合方法准确测量 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$

溶液标准源的活度量值,再利用已知活度的标准源,对使用活度计测量 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液活度的方法进行标准化研究。

1 ^{188}Re 核性质

^{188}Re 核素主要分支的衰变纲图示于图 1^[2]。 ^{188}Re 的物理性质如下:①发射适宜治疗的高能 β 射线;②发射适宜显像的 155.032 keV 的 γ 射线;③半衰期为 16.98 ± 0.02 h。其比较理想的核性质、优良的化学特性以及可以由 ^{188}W - ^{188}Re 发生器淋洗获得,使得 ^{188}Re 成为一种很有前景的治疗用放射性核素。

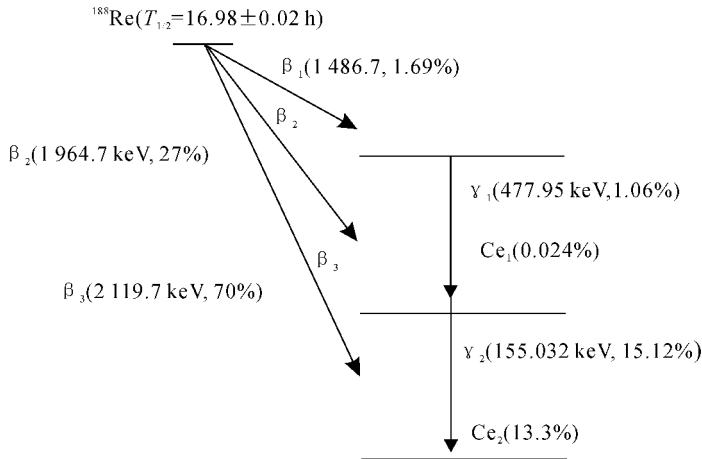


图 1 ^{188}Re 的衰变纲图

2 标准源活度量值的确定

采用高纯锗 γ 谱仪对 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液(由上海科兴药业公司生产的 ^{188}W - ^{188}Re 发生器用生理盐水淋洗获得)进行核纯度分析,其 γ 放射性杂质小于 0.1%。根据不同测量方法,对其样品用精密天秤称重,按比例精确稀释,并严格按方

法要求制成放射源或分装。其活度量值主要由从事本专业绝对测量的 3 个研究机构利用 $4\pi\beta$ - γ 符合法和 $4\pi\beta$ 液闪法 2 种方法共 4 套独立的测量系统,分别精确测量比对确定,结果列于表 1。由表 1 可以看出,其扩展不确定度小于 3% ($k=3$)。

表 1 绝对测量方法确定 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液标准源活度量值

方法	各单位所测标准溶液的比活度/($\text{kBq} \cdot \text{g}^{-1}$)			平均比活度 /($\text{kBq} \cdot \text{g}^{-1}$)
	中国计量科学研究院	国防科工委放射性计量一组站	中国原子能科学研究院	
$4\pi\beta$ - γ 符合	5 875.1(0.9%)	6 091.3(1.8%)		6 047.8
$4\pi\beta$ (LS)液闪	6 068.6(1.0%)		6 156.3	

注:括号内为不确定度

3 活度计测量 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液活度

3.1 活度计型号

主要采用 CRC 系列 (CRC-30BC 和 CRC-15R) 活度计 (美国 Capintec 公司生产), 仪器基本误差 $<4\%$, 长期稳定性在 $\pm 0.6\%$ 以内, 主要技术指标符合标准级^[4], 并且该型号实现了校正因子标准化, 便于利用标准源进行统一标定。此外, 还采用了一台国产 RM 型活度计。

3.2 标准源容器

本标准源为液态, 其 γ 放射性杂质 $<0.1\%$ 。选取两种标准规格的容器, 一种是标准安瓿瓶 $\phi 16.5 \pm 0.1 \text{ mm}$, 厚度 0.6 mm ; 另一种是标准管式瓶 $\phi 22.5 \pm 0.3 \text{ mm}$, 厚度 $1.0 \pm 0.1 \text{ mm}$ 。容器材料规格必须相对固定, 否则在测量中会带来不容忽视的系统误差。

3.3 利用标准源对测量方法进行标准化研究

3.3.1 样品溶液量对活度测量的影响 利用 3 种型号的活度计 (CRC-30BC, CRC-15R, RM), 针对 2 种不同规格的容器, 研究样品溶液量对活度测量结果的影响规律, 结果分别示于图 2 和图 3。由图 2 和图 3 可见, 1 mL 以下样品溶液量变化对活度测量结果的影响比较明显, 并与活度计型号有关。国产活度计样品溶液量变化对测量结果的影响很明显; 样品溶液量为 $3.6 \sim 5 \text{ mL}$, 对活度测量结果的影响 $<1\%$ 。据此, 本工作标准源样品溶液量归一为 3.6 mL (3.6 g)。

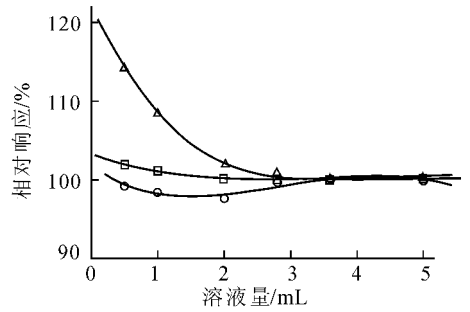


图 3 标准管式瓶中 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$

样品溶液量对活度测量结果的相对影响
□——CRC-30BC; ○——CRC-15R; △——RM

标准源给出的活度量值测试引起的响应电流, 重复测量多次, 确定其校正因子 K 。结果显示, 标准安瓿瓶中活度计的校正因子 K 为 0.164 MBq/pA , 标准管式瓶中, K 为 0.213 MBq/pA 。

对于美国 Capintec 公司生产的 CRC 系列活度计, 由于它的设计严谨, 实现了校正因子标准化, 一旦标定结果给出就可在同型号、甚至同一厂家同类产品中适用。标定方法为: 采用尚待确定量值的样品, 通过调整校正拨号, 测量其相应活度值, 绘出校正曲线, 校正曲线在一定范围内近似为直线。其在标准安瓿和管式瓶中的标定结果分别示于图 4 和图 5。根据图 4 和图 5 利用已知活度的标准源确定校正拨号, 结果显示, 标准安瓿瓶 (3.6 g) 的校正拨号为 6350 ± 20 , 标准管式瓶 (3.6 g) 的校正拨号为 6270 ± 30 。

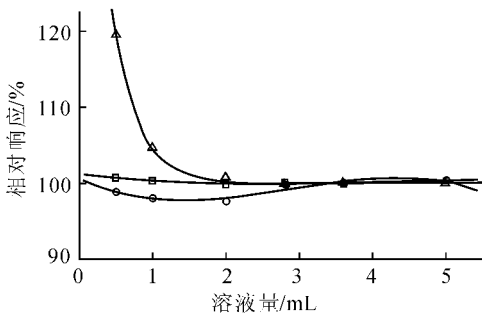


图 2 标准安瓿瓶中 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$

样品溶液量对活度测量结果的相对影响

□——CRC-30BC; ○——CRC-15R;
△——RM

3.3.2 校正因子或校正拨号的确定 利用上述标准源的规格 (溶液量为 3.6 g), 对 3 种不同型号的活度计的校正因子或校正拨号进行标定。对于国产 RM 活度计, 因校正因子无法按系列标准化, 因此, 每台分别标定。标定方法为: 根据

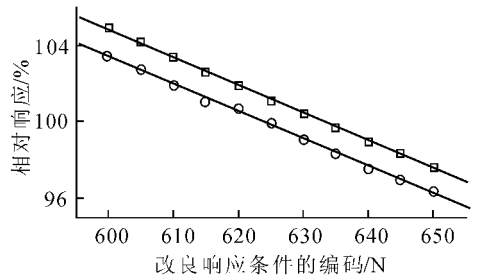


图 4 采用不同容器中的标准源
对 CRC-30BC 活度计标定

□——标准安瓿瓶; ○——标准管式瓶

对 CRC 系列活度计经过严格标定后, 进行了合成不确定度计算, 最终计算得到其扩展不确定度为 3.3% ($k=3$), 与 1998 年美国标定结果

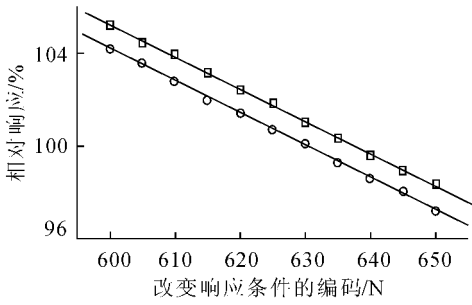


图 5 采用不同容器中的标准源
对 CRC-15R 活度计标定
□——标准安瓿瓶;○——标准管式瓶

在测量不确定度范围内符合的很好^[5]。

3.4 利用活度计测量 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液活度的比对实验

根据上述标准源规格要求以及仪器标定条件结果,利用已知活度的标准源,精确配制比对样品溶液,在数家实验室 10 台活度计上进行了活度测量比对实验,其结果列于表 4。其中前 9 台为 CRC 系列活度计测定结果,全部测定值均在标准值的 $\pm 3\%$ 以内;最后 1 台为国产 RM 型,在标准安瓿瓶中,测定值与标准值相差 2.6%,在标准管式瓶中,测定值与标准值相差 5.2%。

表 4 活度测量比对实验结果

活度计编号	标准安瓿瓶		标准管式瓶	
	放射性比活度/($\text{MBq} \cdot \text{g}^{-1}$)	相对偏差/%	放射性比活度/($\text{MBq} \cdot \text{g}^{-1}$)	相对偏差/%
A101	19.63	+0.8	19.52	+0.1
A102	19.51	+0.2	19.51	0.0
A103	19.19	-1.4	19.31	-1.0
B204	19.71	+1.2	19.98	+2.4
B305	19.40	-0.4	19.53	+0.1
B406	19.66	+1.0	19.83	+1.6
D107	19.91	+2.2	19.95	+2.2
D208	19.29	-0.9	19.45	-0.3
D309	19.46	-0.1	19.55	+0.2
G110	18.97	-2.6	18.50	-5.2
平均	$19.47 \pm 0.47 (\pm 1.4\%)$		$19.51 \pm 0.42 (\pm 2.0\%)$	

4 结论

虽然 ^{188}Re 同时发射 β 粒子和 γ 光子,在利用活度计测量 ^{188}Re 活度的过程中,受其它多种因素影响,但本工作的标定结果和比对实验结果表明,在经过严格的标准化标定后,可以使用 CRC 系列活度计对 $\text{Na}^{188}\text{ReO}_4$ 溶液的活度进行准确测量,这对确保含 ^{188}Re 放射性药品临床应用安全、有效具有重要意义。

致谢:对参与本项目的协作单位及相关人员表示感谢。

参考文献:

- [1] 国家质量监督检验检疫总局. EJ/T1163-2002 ^{188}W - ^{188}Re 色层发生器[S]. 北京:中国标准出版社,2002.
- [2] 刘运作. 常用放射性核素衰变纲图[M]. 北京:原子能出版社,1982:251.
- [3] 汪建清,杨巧玲,姚艳玲,等. ^{153}Sm 、 ^{89}Sr 、 ^{188}Re 等活度绝对测量比对[J]. 原子能科学技术,2003,37(3):193-197.
- [4] 姜金岭. 标准放射性活度测量仪计量特性与控制[J]. 核标准计量与质量,1998,46(4):2-6.
- [5] ZIMMERMAN BF, CESSNA JT, UNTERWEGER MP, et al. A New Experimental Determination of the Dose Calibrator Setting for ^{188}Re [J]. JNM,1999, 40(9):1 508-1 516.