

Az Országos „Frédéric Joliot-Curie” Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, az MH Egészségügyi Szolgálat<sup>\*</sup> és a BME Nukleáris Technikai Intézet<sup>\*\*</sup>

## **Testszövetekben neutronok hatására keletkező radioaktív izotópok mérésén alapuló baleseti neutron-dozimetriai eljárás**

### **I. A reaktor aktív zónájában besugárzott vérminták aktivítása**

**Dr. Kanyár Béla a biológiai tudomány kandidátusa**

<sup>\*</sup> **Dr. Gachályi András mk. alezredes**

**Kerekes Andor**

**Kovács László**

**Dr. Sztanyik B. László az orvostudomány kandidátusa**

**Dr. Varga P. László az orvostudomány kandidátusa**

<sup>\*\*</sup> **Dr. Virág Elemér**

**Érkezett: 1990. 09. 10.**

**Kulcsszavak: neutron besugárzás, neutronaktiváció, neutron dozimetriai eljárás.**

A neutrontermelő üzemek (atomreaktorok, gyorsítók stb.) közelében dolgozóknál fennáll annak a veszélye, hogy üzemzavar esetén rövid idő alatt nagyobb neutron sugárzás éri a szervezetüket. Ekkor a sugár-expozíció meghatározására szolgáló neutrondetektorok mellett segítséget jelenthet a neutronaktiváció révén az élő szervezetben keletkező radioizotópok mérése. Az alkalmazási lehetőségek vizsgálatához reaktorban, in vitro körülmények között emberi vérmintákat sugaraztunk be és mértük a keletkező izotópok aktivitását. A becsült kimutatási határ a kis energiájú neutron-tartományban 0,25 Gy, a nagyobb energiákon pedig 0,5 Gy volt. Mind az érzékenységi, mind a kimutatási határ értékeket erősen meghatározza a neutronsugárzás energiaelosztása. A kis (termikus) energia tartományban a <sup>24</sup>Na, míg nagy energiáknál (  $> 2$  MeV) a <sup>32</sup>P mérésével érhető el nagyobb érzékenység.

*Bevezetés*

Az atomreaktorok, kritikus rendszerek, gyorsítók és más neutrontermelő üzemek működése közben fennáll a veszélye annak, hogy egy üzemzavar vagy baleset közben a dolgozókat hosszabb-rövidebb ideig neutron sugárzás (n-sugárzás) éri. Hasonló veszéllyel kell számolnunk egy nukleáris szerkezet esetleges robbanásakor is.

A n-sugárzással dolgozók személyi dozimetriai ellenőrzésére a neutronokra érzékeny, különböző detektorok (1, 2, 3) használhatók. A sugárterhelés azonban nehezen becsülhető, ha a detektort nem, vagy alig éri neutronnyaláb (lokális besugárzás) vagy a dózismérőt valamilyen okból nem viselte az ott dolgozó személy. Ekkor adhat segítséget a neutron aktiváció révén a testszövetekben keletkező radioaktív izotópok mérése.

A n-sugárzás hatására ugyanis, mint minden anyagban, az élő szervezetben is, lejátszódó magreakciók eredményeként radioaktív izotópok keletkeznek. Ezután az egyes testszövetek, vagy az egésztest radioaktivitásának mérésével következtetni lehet a szövetet, szerkezetet ért n-sugárzás nagyságára, s így az elnyelt neutron dózisra (4, 5, 6, 7).

Az irodalomban számos utalás található (3, 8, 9) a nukleáris balesetek során kapott neutron dózisok becslésére. A közölt eredmények összehasonlítását és az adatok hasznosítását azonban jelentősen megnehezíti, hogy a kísérleteket nem azonos, vagy csak közel azonos körülmények között végezték.

A módszer esetleges hazai alkalmazása előtt mindenképpen szükségesnek láttuk a kipróbálását, in vitro körülmények között. Az ajánlott módszer az általánosan használt neutron-doziméterek mérési adatait kiegészítheti, vagy ezek hiányában a biológiai hatást vizsgáló módszerekkel együtt (10, 11) nagyobb szerepet is kaphat.

*Anyagok és módszerek**1. A mérési eljárás magfizikai alapjai*

A magreakció eredményének méréséhez, s így a neutrontózis meghatározásához, elsősorban a nagy reakció hatáskeresztmetszettel rendelkező és az élő szervezetben magas koncentrációban előforduló stabil izotópok használhatók fel. Az emberi szövetknél a fontosabb magreakciók jellemző adatait az 1. táblázatban foglaltuk össze.

A hatáskeresztmetszetek termikus, hasadási és 14 MeV energiájú neutronokra vonatkoznak. A hasadási neutronok energiája széles tartományban változik, és az energiaspektrum maximuma 0,5–1,5 MeV tartományban van. A 14 MeV energiájú neutronok elsősorban a gyorsítóknál keletkeznek.

A n-sugárzás hatására a magreakciókban keletkezett termékek radioaktivitása a pillanatnyi besugárzást követő  $t$  idő elteltével a következő egyenlettel fejezhető ki (2):

$$A_{(t)} = e^{-\frac{\ln 2}{T} \cdot K} \cdot \frac{C}{T} \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE$$

ahol  $A_{(t)}$  : az adott termék radioaktivitása a besugárzás után  $t$  idővel

$T$  : a termék felezési ideje (1. 2. táblázat)

$C$  : a célelem koncentrációja (pl.  $g/cm^3$ )

(E):  $n$ -fluxus az E energia függvényében, a vizsgált  $n$  energiatartományban, melyre az integrálást el kell végezni

(E): a reakció hatáskeresztmetszete az energia függvényében

$K$  : arányossági tényező, mely a célnuklid atomsúlyát és a fizikai egységek átszámítási tényezőit tartalmazza.

A szóbajöhető viszonyok (rövid ideig tartó besugárzás) mellett a  $n$ -aktiváció nem közelíti meg a telítést, ezért a termék radioaktivitása és a  $n$ -fluxus közötti kapcsolat lineárisnak vehető. A küszöbenergia alatti neutron-energiák esetén a magreakció hatáskeresztmetszete elhanyagolható. Így pl. a  $^{32}\text{Si}(n, p)^{32}\text{P}$  reakció után keletkező  $^{32}\text{P}$  izotóp csak a 2,8 MeV-nél nagyobb energiájú neutronokból származhat.

A radioaktív termékek jellemzőit a 2. táblázatban adtuk meg.

## 2. Méréstechnikai eljárások

A szöveti besugárzást követő reakciótermékek közül a  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{38}\text{Cl}$  és a  $^{42}\text{K}$  gamma-spektrométerrel jól mérhető. A  $^{32}\text{P}$  és részben a  $^{31}\text{Si}$  béta-sugárzásnak mérésére végablakos GM-cső használható.

### a. Gamma-spektrometriai vizsgálat

A méréseket félvezető detektorokkal, CANBERRA típusú sokcsatornás analizátorokkal, ill. néhány esetben NaI (Tl) detektoros üreges mérőhellyel végeztük.

A mérési geometriák: 10 ml (félvezető detektor)

5 ml (NaI(Tl) kristály)

Kimutatási határok, 10 perc mérési idő esetén

(Bg/minta):

|                |   |    |    |
|----------------|---|----|----|
| Félvezető det. | 3 | 20 | 15 |
| NaI(Tl)        | 2 | 15 | 10 |

### b. Béta-mérés

A méréseket TESLA NSB-214 típusú gázátáramlásos GM csővel (háttér: 1,1-1,5 imp/perc) végeztük összesen 2 ml, Al-tálcára beszárított teljes vér mintákból. A  $^{32}\text{P}$  kimutatási határa 10 perc mérési idővel 0,07 Bq/minta. A mérés határfoka - ismert aktivitású  $^{32}\text{P}$ -etalonnal összehasonlítva - 33% volt.

## 3. A vérminták előkészítése és besugárzása

Vizsgálatainkban frissen levett emberi vénás vért használtunk. A vérhez milliliterenként 25E litium heparint (SIGMA, St. Louis, U.S.A.) adtunk, óvatosan összeráztuk, majd mintánként 2 ml mennyiségben polietilén csövekbe légmentesen lezártunk. Az előkészített mintákat besugárzás előtt un. besugárzó torpedóba helyeztük.

A SZÓBAJÖHETŐ FONTOSABB MAGREAKCIÓK, A CÉLELEMENK MENNYISÉGE AZ EMBERBEN ÉS A  
MAGREAKCIÓK JELLEMZŐ ADATAI (IAEA. Techn. Rep. N<sup>o</sup> 211. és W. S Snyder után)

| Magreakció*                           | Egésztest | Célelem menny. |       | Term. n. | Reakció hat. keresztm. |         | Küszöb energ.<br>(MeV) |
|---------------------------------------|-----------|----------------|-------|----------|------------------------|---------|------------------------|
|                                       |           | (g)<br>Vér     | Haj   |          | (mbarn)<br>Hasadási n. | 14 MeVn |                        |
| $^{23}\text{Na} (n, ) ^{24}\text{Na}$ | 100       | 10             | 0,013 | 520      | 1,0                    | 0,33    | term.                  |
| $^{37}\text{Cl} (n, ) ^{38}\text{Cl}$ | 24        | 3,9            | 0,01  | 5        | 2,0                    | 0,1     | - - -                  |
| $^{41}\text{K} (n, ) ^{42}\text{K}$   | 10        | 0,61           | - - - | 1300     | 5,0                    | 3,5     | - - -                  |
| $^{31}\text{P} (n, ) ^{32}\text{P}$   | 780       | 1,9            | - - - | 190      | 0                      | 0       | - - -                  |
| $^{31}\text{P} (n,p) ^{31}\text{Si}$  | 780       | 1,9            | - - - | 190      | 31,0                   | 86,0    | 2,7                    |
| $^{32}\text{S} (n,p) ^{32}\text{P}$   | 130       | 9,5            | 0,85  | 0        | 60,0                   | 370,0   | 2,8                    |
| $^{24}\text{Mg} (n,p) ^{24}\text{Na}$ | 15        | 0,17           | 0,01  | 0        | 1,3                    | 165,0   | 7,2                    |

\* (A  $^{23}\text{Na} (n, ) ^{24}\text{Na}$  jelölés esetén a  $^{23}\text{Na}$  a célelem és neutron hatására, -sugárzás kíséretében jön létre a  $^{24}\text{Na}$  izotóp.)

A RADIOAKTÍV TERMÉKEK (NUKLIDOK) JELLEMZŐI  
(IAEA. Techn. Rep. N<sup>o</sup> 211. és M. Barrier után)

| Nuklid           | Részecskehozam és energia (MeV) |            |              |              | Felezési idő |
|------------------|---------------------------------|------------|--------------|--------------|--------------|
|                  | $\beta$ (%)                     | $E_{\max}$ | $\delta$ (%) | $E_{\gamma}$ |              |
| <sup>24</sup> Na | 100                             | 1,39       | 100          | 2,75         | 15 óra       |
|                  |                                 |            | 100          | 1,37         |              |
| <sup>31</sup> Si | 100                             | 1,48       | 7            | 1,26         | 2,6 óra      |
| <sup>32</sup> P  | 100                             | 1,71       | -            | -            | 14 nap       |
| <sup>38</sup> Cl | 53                              | 4,8        | 47           | 2,2          | 37 perc      |
|                  |                                 | 31 1,1     | 31           | 1,6          |              |
|                  |                                 | 16 2,7     |              |              |              |
| <sup>42</sup> K  | 82                              | 3,5        | 18           | 1,5          | 12,5 óra     |
|                  | 18                              | 2,0        |              |              |              |

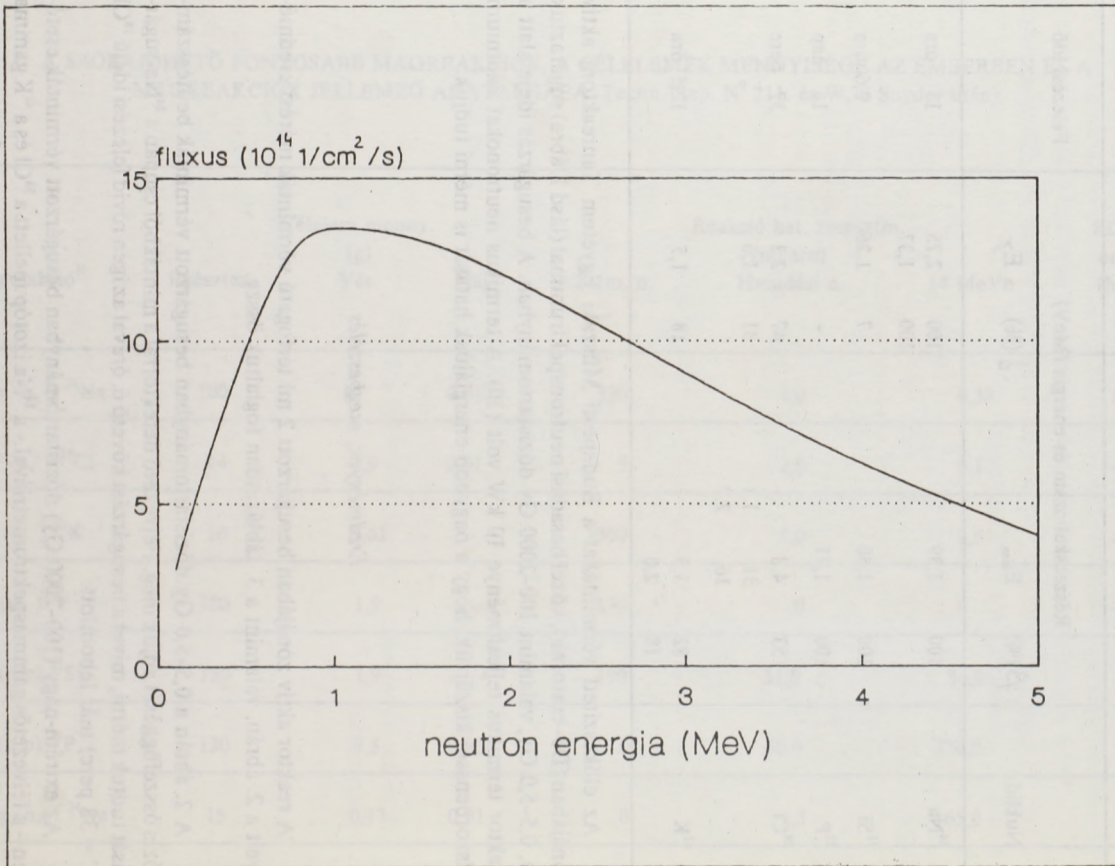
Az előkészített vérmintákat a Budapesti Műszaki Egyetem Tanreaktora aktív zónájában (D5-csatorna), közel hasadási neutronspektrummal (lásd 1. ábra) sugaraztunk be, 0,5–5,0 Gy, valamint 100–2000 Gy dózistartományban. A besugárzás ideje alatt a reaktor termikus teljesítménye 10 kW volt (10). A termikus neutronokat kadmium adszorbenssel kiszűrtük, hogy a nagyobb energiájúak hatását is mérni tudjuk.

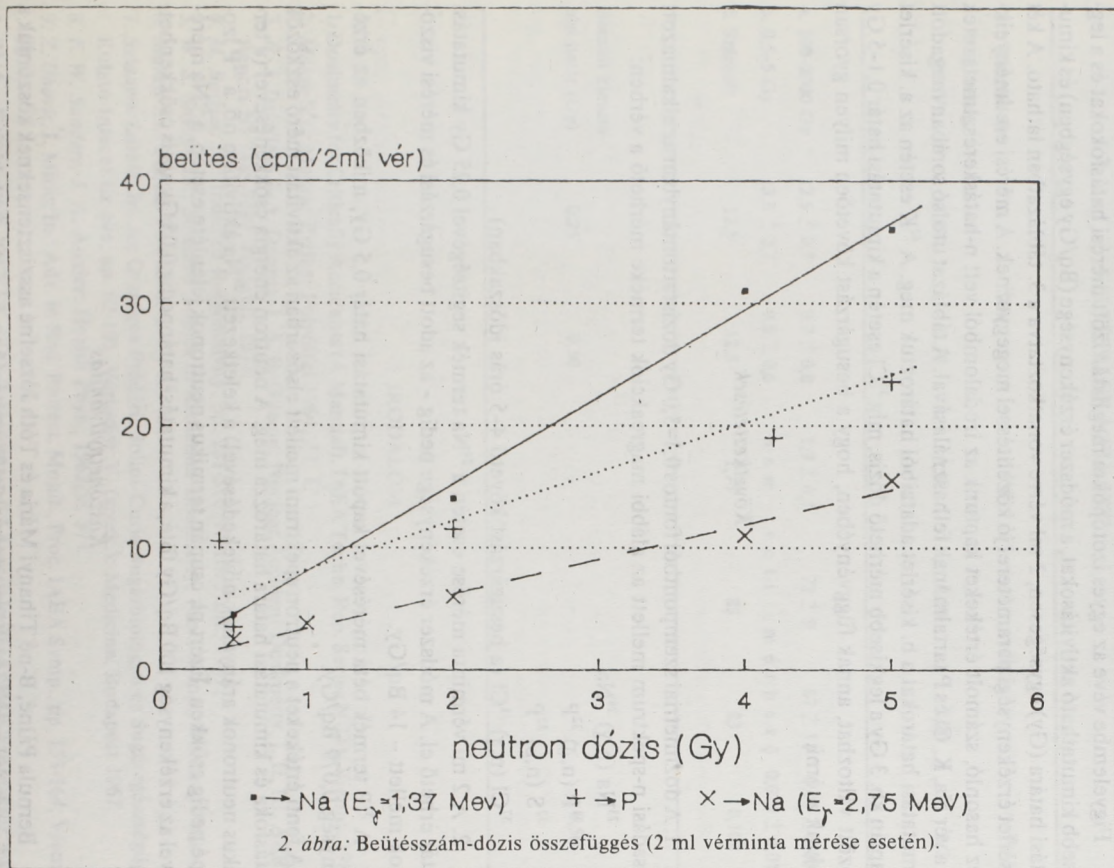
### Eredmények, megbeszélés

A reaktor aktív zónájában besugárzott 2 ml térfogatú vérminták mérési eredményeit a 2. ábrán, valamint a 3. táblázatban foglaltuk össze.

A 2. ábrán a 0,5–5,0 Gy dózistartományban besugárzott vérminták beütésszám-dózis összefüggését adjuk meg. Félvezető detektorral a mintákból csupán a <sup>24</sup>Na-sugárzását tudtuk mérni, mivel a besugárzást követő 6. órával az igen rövid felezési idejű <sup>38</sup>Cl (T = 38 perc) már lebomlott.

Az extrém-nagy (100–2000 Gy) dózistartományban besugárzott vérminták esetében – a félvezetős gammaspektrometriával – a <sup>24</sup>Na izotóp mellett a <sup>38</sup>Cl és a <sup>42</sup>K gamma sugárzását is mértük.



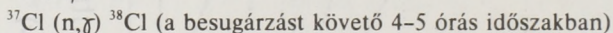
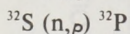
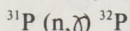
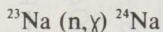


Mindkét besugárzási dózistartományban a gamma-spektrometriás méréseket követő 5-6. naptól néhány vérmintából a gázátáramlásos GM-csőves berendezéssel mértük a vér béta-sugárzását. A mérések alapján számított felezési idő 15 nap volt, ami  $^{32}\text{P}$  izotóp jelenlétére utalt. A félvezető detektoros és a GM-csőves mérési eredményeinkből megállapítható, hogy az elméletnek megfelelően, a beütésszám-dózis összefüggés lineáris ezen széles (0,5-2000 Gy) dózistartományban.

Figyelembe véve az egyes izotópokra meghatározott mérési határfokokat és a legkisebb kimutatható aktivitásokat, a módszer érzékenysége (Bq/Gy egységben) és kimutatási határa (Gy) egységesen, 2 ml vérről vonatkoztatva a 3. táblázatban látható. A két kísérlet érzékenységi paraméterei jó közelítéssel megegyeznek. A mérési eredményeikhez hasonló, számolt értékeket kaptunk az irodalomból vett n-hatáskeresztmetszetek és a vér Na, K, Cl és P tartalmának felhasználásával. A táblázat utolsó sorában megadott kimutatási határokat a b. kísérlet adataiból határoztuk meg. A  $^{42}\text{K}$  esetén az a. kísérlet alapján kb. 3 Gy a legkisebb mérhető dózis, míg  $^{38}\text{Cl}$  esetén a kimutatási határ 0,1-5 Gy között változhat, annak függvényében, hogy a besugárzást követően milyen gyorsan tudunk mérni.

#### Következtetések

1. A dozimetriai szempontból fontos 0,1-5,0 Gy dózistartományban az alkalmazott hasadási n-spektrum mellett az alábbi magreakciók terméke mérhető a vérben:



2. A 2 ml vérminta mérése esetén a  $^{24}\text{Na}$  termék segítségével 0,25 Gy kimutatási határ érhető el. A módszer érzékenysége pedig - az adott besugárzási és mérési viszonyok mellett - 14 Bq/Gy.

A  $^{32}\text{P}$  termék béta mérésével kapott kimutatási határ 0,5 Gy, miközben az érzékenység 0,079 Bq/Gy.

A fenti értékeket a neutron spektrum mellett elsősorban az aktivitást mérő eszközök határfoka és kimutatási határa határozza meg. A neutron energia csökkenésével (a termikus neutronok arányának növekedésével) a keletkezett  $^{24}\text{Na}$  aktivitása nő, a  $^{32}\text{P}$  izotóp pedig csökken. Ezért pl. csupán termikus neutronok jelenléte esetén, a  $^{24}\text{Na}$  mérésével az érzékenység 100 Bq/Gy fölé, a kimutatási határ pedig 0,05 Gy alá is csökkenhet.

#### Köszönetnyilvánítás

Bernula Pálné, B-né Tihanyi Mária és Tóth Józsefné asszisztenseknek köszönjük a lelkiismeretes munkát a készítmények előkészítésében és a mérések kivitelezésében.



**A MÓDSZER MÉRT (a, b) ÉS HATÁSKERESZTMETSZETEK ALAPJÁN  
SZÁMOLT (c) ÉRZÉKENYSÉGEI (Bq/Gy egységben), VALAMINT A  
KIMUTATÁSI HATÁROK 2 ML VÉRRE VONATKOZTATVA, A  
LEÍRT NEUTRON SPEKTRUM ÉS MÉRÉSI  
FELTÉTELEK MELLETT.**

| Termék és<br>sug. energ.<br>(MeV)          | <sup>24</sup> Na | <sup>42</sup> K | <sup>38</sup> Cl | <sup>32</sup> P |               |               |
|--|------------------|-----------------|------------------|-----------------|---------------|---------------|
|  | 1,37             | 2,75            | 1,52             | 1,60            | 2,20          | 1,7           |
| a. 100-2000 Gy                             | 12,5 ± 0,7       | 9,7 ± 0,8       | 1,9 ± 0,1        | 72 ± 9          | 67 ± 11       | 0,10 ± 0,003  |
| b. 0,5-5 Gy                                | 13,8 ± 0,7       | 9,8 ± 0,6       | n e m            | v o l t         | m é r h e t ő | 0,079 ± 0,013 |
| c. Számolt                                 | 12,5             | 12,5            | 1,75             | 83              | 83            | 0,102         |
| <b>Becsült kimuta-<br/>tási határ (Gy)</b> | 0,25             | 0,30            | -                | -               | -             | 0,50          |

### IRODALOM

1. Dosimetry for Critically Accidents (A Manual). IAEA Techn. Rep. Series N<sup>o</sup>211, Vienna, 1982.
2. *Makra Zs.*: Magyar Fizikai Folyóirat 1964, 13, 1.
3. *H. J. Delafield, J. A. Dennis, J. A. B. Gibson*: Nuclear Accident Dosimetry, I, II, III. AERE-Report N<sup>o</sup> 7485-7487, Harwell, 1973.
4. *M. Barrier*: In.: Induced Radioactivity, pp. 281-316, North Holl., 1969.
5. *W. S. Snyder*: In.: Selected Topics in Radiation Dosimetry, Proc. Symp., Vienna, 1960.
6. *Makra Zs.*: Fizikai Folyóirat, 1967, 15, 461.
7. *Sztanyik László*: In. Az Országos Frédéric Joliot-Curie Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet tíz éve, pp. 92-105. Várterész V. (szerk.): Medicina, Budapest 1967.
8. *F. W. Sanders, J. A. Auxier*: Health Phys., 1962, 8, 371.
9. *Z. Ubovic, I. Miric*: In.: Adv. in Rad. Protect. Monit., Proc. IAEA Symp., pp. 153-164, Vienna, 1979.
10. *Zsolnai E., Szondi E.*: OKKFT A/11-7. alprogram 7.1.4. sz. jelentése, BME Tanreaktor, 1983.
11. *Cs. Kormos, G. J. Köteles*: Mutat. Res., 1988, 199, 31.
12. *S. Gundy, L. Varga, M. A. Bender*: Radiat. Res., 1984, 100, 47.

B. Kanyár et al.

## ACCIDENTAL NEUTRON DOSIMETRY BASED ON THE DETERMINATION OF THE RADIOACTIVITY INDUCED IN HUMAN TISSUES

### *I. The radioactivity of the blood samples irradiated by spallation neutrons*

A part or whole of the human body may be exposed by neutrons due to misuses of neutron sources as accelerators and nuclear reactors. To assess the radiation dose suffered from the neutrons the induced radioactivity in the body tissues can be measured, additionally to the use of physical dosimeters.

Factors affect the induced activity were investigated by irradiation of human blood samples placed in the active zone of the reactor. In the samples radionuclides of  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{42}\text{K}$  and  $^{32}\text{P}$  were induced by neutrons with low and high energy, respectively.

The sensitivity and detection limit of the method are influenced mainly by the energy spectrum of the neutrons. From the determinations of the activities of  $^{24}\text{Na}$  and  $^{32}\text{P}$  the estimated detection limit of the dose is 0.25 Gy for low energy and 0.50 Gy for higher ( 2 MeV) energy.

## МЕТОД АВАРИЙНОЙ НЕЙТРОННОЙ ДОЗИМЕТРИИ, ОСНОВАННОЙ НА ИЗМЕРЕНИИ РАДИОАКТИВНОСТИ ТКАНЕЙ ТЕЛА

### *I. Радиоактивность облученных в активной зоне реактора образцов крови*

#### РЕЗЮМЕ

У работающих вблизи нейтроно-продуцирующих установок (атомные реакторы, ускорители и т.д.) при нарушениях режима существует потенциальная возможность облучения организма нейтронами за короткий промежуток времени. При этом, помимо нейтронных детекторов, служащих для определения лучевой экспозиции, может оказать помощь измерение радиоизотопов, возникших в живом организме посредством нейтронной активации.

Для рассмотрения возможности применения такого метода было проведено облучения образцов человеческой крови в реакторе ин-витро и измерение активности возникших изотопов.

Оценочный детектируемый лимит составляет 0,25 Гр в диапазоне низких энергий и 0,50 Гр в диапазоне больших энергий. Величины чувствительности и лимитов детектирования определяются в значительной мере распределением энергии нейтронного излучения. В диапазоне низких энергий (термических) с измерением  $^{24}\text{Na}$ , а в диапазоне больших энергий (>2 МэВ) с измерением  $^{32}\text{P}$  достигается большей чувствительности.