

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

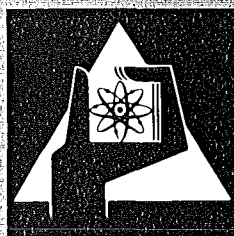
Februar 1977

KFK 2420

Laboratorium für Isotopentechnik

**In-vivo-Bestimmung von Kalzium und Phosphor
in der Hand durch
Neutronenaktivierungsanalyse mit Cf-252**

G. Seiler



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2420

Laboratorium für Isotopentechnik

In-vivo-Bestimmung von Kalzium und Phosphor in der Hand
durch Neutronenaktivierungsanalyse mit Cf-252 +)

G. Seiler

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

+) von der Fakultät für Verfahrenstechnik der Universität
Stuttgart genehmigte Dissertation

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird eine Möglichkeit beschrieben, die Gehalte an Kalzium und Phosphor in den Knochen der Hand in vivo zu bestimmen. Das Verfahren basiert auf der Methode der Neutronenaktivierungsanalyse. Dabei wird nachgewiesen, daß Cf-252 als Neutronenquelle geeignet ist. Bei günstig gewählten Parametern kann eine Genauigkeit von 3% bei Ca bzw. 6% bei P erreicht werden. Das Verfahren ist vor allem für Verlaufsmessungen des Mineralgehalts im Knochen geeignet; an einer Person können bis zu 4 Messungen im Jahr durchgeführt werden.

Abstract

In vivo Analysis of Calcium and Phosphorus in the Hand by Neutron Activation with Cf-252.

This report is a description of a process allowing to analyze in vivo the amounts of calcium and phosphorus in the bones of the hand. The method applied is the neutron activation analysis. It is shown that Cf-252 is suitable as a neutron source. Using optimum parameters, the measured accuracy is 3% for Ca and 6% for P. The process is intended for regular measurement over a given period of time; it is possible to make 4 measurements a year at one person.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Literaturverzeichnis	5
Verzeichnis der Formelzeichen	12
1. Einleitung	15
2. Darstellung der Methoden zur Bestimmung des Mineralgehalts und Zielsetzung der vorliegenden Arbeit	16
2.1. Radiologische Verfahren	16
2.2. Absorption von γ -Strahlung	17
2.3. Neutronenaktivierungsanalyse	18
2.4. Formulierung der Aufgabe	21
3. Grundlagen der Aktivierungsanalyse	22
3.1. Aktivierung	23
3.2. Nachweis der Strahlung	24
3.2.1. Nachweis der prompten Strahlung	24
3.2.2. Nachweis der verzögerten Strahlung	25
3.2.3. Messung von γ -Strahlung	27
3.3. Störeinflüsse	31
4. In-vivo-Bestimmung von Kalzium und Phosphor in der Hand mit Cf-252	32
4.1. Aktivierung	32
4.2. Neutronenquelle und Bestrahlungsanlage	34
4.2.1. Eigenschaften von Cf-252	34
4.2.2. Umgang mit Cf-252	35
4.2.3. Bestrahlungsanlage	36
4.3. Messung	38
4.4. Auswertung der γ -Spektren	39
4.5. Störreaktionen	42

5.	Experimente und Ergebnisse	43
5.1.	Versuchsobjekte	43
5.2.	Flußdichteverteilung der Neutronen	44
5.3.	Aktivierung von Ca und P	45
5.4.	Dosis	47
5.5.	Optimierung der Bestrahlungsparameter	50
5.6.	Messung der Aktivität	52
5.6.1.	Impulsausbeute des Detektorsystems	52
5.6.2.	Vergleich Zylindergeometrie - Quadergeometrie	53
5.7.	Optimierung der Meßparameter	54
5.7.1.	Meßgeometrie	54
5.7.2.	Meßzeit	55
5.8.	Störreaktionen	55
5.9.	Reproduzierbarkeit	58
5.10.	In-vivo-Experimente	58
6.	Zusammenfassung	60
	Tabellen	61
	Abbildungen	69
	Anhang 1: Verwendete Chemikalien	89
	Anhang 2: Meßgeräte	89

- /8/ Virtama, P.,
Mähönen, H. Thickness of the Cortical Layer
as an Estimate of Mineral Content
of Human Finger Bones.
Brit.J.Radiol. 33 (1960) 60
- /9/ Heuck, F.,
Schmidt, E. Die praktische Anwendung einer
Methode zur quantitativen Be-
stimmung des Kalksalzgehalts
gesunder und kranker Knochen.
Fortschr. Röntgenstr. 93 (1960)
761
- /10/ Nagel, M.,
Heuck, F.,
Epple, E.,
Decker, D. Bestimmung des Knochenmineral-
gehaltes aus dem Röntgenbild mit
Hilfe der digitalen Datenver-
arbeitung.
Fortschr. Röntgenstr. 121 (1974)
604
- /11/ Krokowski, E. Die röntgenologische Substanz-
analyse des Knochens. Prinzip
und praktische Durchführung.
Fortschr. Röntgenstr. 108 (1968)
394
- /12/ Heuck, F. (Hrsg.) Densitometrie in der Radiologie
(Symp. Stuttgart 1971).
G. Thieme Verlag Stuttgart
1973, S.291 f.
- /13/ Börner, W.,
Grehn, S.,
Moll, E.,
Rauh, E. Messung der Absorption des
Fingerknochens mit einem ¹²⁵J-
Profils Scanner. Quantitative
Methode zur Erkennung der
Osteoporose.
Fortschr. Röntgenstr. 110 (1969)
378

- /14/ Rassow, J.,
Strüter, H.-D. Über ein Verfahren zur quantita-
tiven Bestimmung des Mineralge-
halts der Knochen mit radio-
aktiven Isotopen.
II. Mitteilung: Zwei-Isotopen-
methode.
Fortschr. Röntgenstr. 111 (1969)
155
- /15/ Schmeling, P. Measurement of Bone Mineral
Content Using Radiation Sources.
An Annotated Bibliography.
AE-454 (1972); Suppl.1 (1974)
- /16/ Anderson, J.
et al. Neutron Activation Analysis in
Man in vivo - A New Technique
in Medical Investigation.
Lancet 2 (1964) 1201
- /17/ In vivo Neutron Activation Analysis (Proc. Panel
Vienna 1972). IAEA Vienna 1973
- /18/ Nelp, W. B.,
Denney, J. D.,
Murano, R.,
Hinn, G. M.,
Chestnut, C. H. Quantitative and Serial Studies
of Total Body Calcium (Bone Mass)
in Man by in vivo Activation
Analysis.
Nuclear Activation Techniques in
the Life Sciences (Proc. Symp.
Bled 1972), IAEA Vienna 1972,
p. 627
- /19/ Chamberlain, M. J.,
Fremlin, J. H.,
Holloway, I.,
Peters, D. K. Use of the Cyclotron for Whole
Body Neutron Activation Analysis:
Theoretical and Practical
Considerations.
Int.J.Appl.Rad.Isot. 21 (1970)
725

- /20/ Comar, D.,
Rivière, R.,
Mazière, B.,
Kellershohn, C. Mise en évidence du phosphore osseux chez l'homme in vivo par radioactivation neutronique et analyse du spectre des γ de capture.
Radioaktive Isotope in Klinik und Forschung (9. Int. Symp. Gastein 1970), Urban und Schwarzenberg München 1970, S.431
- /21/ Boddy, K.,
Holloway, I.,
Elliot, A. A Simple Facility for Total Body in vivo Activation Analysis.
Int.J.Appl.Rad.Isot. 24 (1973) 428
- /22/ Cohn, S. H.,
Shukla, K. K.,
Dombrowski, C. S.,
Fairchild, R. G. A Total Body Neutron Activation Facility Employing Portable (α, n)-Sources Developed for Medical Research.
Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences (Proc. Symp. Bled 1972), IAEA Vienna 1972, p. 605
- /23/ Boddy, K.,
Robertson, I.,
Glaros, D. The Development of a Facility for Partial Body in vivo Activation Analysis Using Cf-252 Neutron Sources.
Phys. Med. Biol. 19 (1974) 853
- /24/ McNeill, K. G.,
Harrison, J. E. Studies of Osteoporosis and Osteomalacia Using Partial Body in vivo Neutron Activation Analysis.
J. Nucl. Med. 14 (1973) 427

- /25/ Catto, G. R. D.,
McIntosh, J. A. R.,
MacLeod, M. Partial Body Neutron Activation
Analysis in vivo: A New Approach
to the Investigation of Metabolic
Bone Disease.
Phys. Med. Biol. 18 (1973) 508
- /26/ Al-Hiti, K.,
Thomas, B. J.,
Dabek, J. T. Measurement of Spinal Calcium
by in vivo Activation Analysis.
Recent Developments in NAA
(Symp. Cambridge 1975)
- /27/ Heuck, F. (Hrsg.) Densitometrie in der Radiologie
(Symp. Stuttgart 1971).
G. Thieme Verlag Stuttgart
1973, S.287 f.
- /28/ Krokowski, E. Radiologische Möglichkeiten zur
individuellen Diagnostik und
pathogenetischen Deutung der
Osteoporose.
Röntgenpraxis 28 (1975) 80
- /29/ Manzke, E.,
Chestnut, C. H.,
Baylink, D. J.,
Nelp, W. B. Measurement of Local and Total
Skeletal Calcium Mass by Gamma
Photon Absorption Technique and
Neutron Activation Analysis.
Tagung Dt. Ges. f. Nuklear-
medizin München 1974
- /30/ Batra, G. J.,
Bewley, D. K. Analysis of Small Biopsy Samples
by Neutron Activation Analysis.
J. Radioanal. Chem. 16 (1973) 275
- /31/ Kruger, P. Principles of Activation Analysis.
Wiley-Interscience New York 1971
- /32/ Lyon, W. S. (Ed.) Guide to Activation Analysis.
D.van Nostrand Comp. Princeton 1964

- /33/ De Soete, D., Neutron Activation Analysis.
Gijbels, R., Wiley-Interscience London 1972
Hoste, J.
- /34/ Schpolski, E. W. Atomphysik, Teil II.
VEB Dt. Verlag der Wissenschaften
Berlin 1967
- /35/ Allkofer, O. C. Teilchen-Detektoren.
Verlag K. Thiemig München 1971
- /36/ Crouthamel, C. E. (Ed.) Applied Gamma-Ray Spectrometry.
Pergamon Press 1960
- /37/ Shafroth, S. M. (Ed.) Scintillation Spectroscopy of
Gamma Radiation, vol.1.
Gordon and Breach Science Publ.
1967
- /38/ Seelmann-Eggebert, W., Karlsruher Nuklidkarte
Pfennig, G., 4. Auflage 1974
Münzel, H.
- /39/ Lederer, C. M., Table of Isotopes.
Hollander, J. M., John Wiley & Sons New York,
Perlman, I. 6th Ed. 1968
- /40/ Senftle, F. E., A Comparison of Radiative Capture
Moxham, R. M., with Decay Gamma-Ray Method in
Tanner, A. B. Bore Hole Logging for Economic
Minerals.
Nucl. Meth. Instr. 104 (1972) 485
- /41/ Stoddard, D. H., Cf-252 Shielding Guide.
Hootman, H. E. DP-1246 (1971)

- /42/ Hall, E. J.,
Rossi, H. H. Californium-252 in Teaching
and Research.
Technical Reports Series No.159,
IAEA Vienna 1974
- /43/ Boulogne, A. R.,
Evans, A. G. Californium-252 Neutron Sources
for Medical Applications.
Int.J.Appl.Rad.Isot. 20 (1969) 453
- /44/ Erste Verordnung über den Schutz vor Schäden durch Strah-
len radioaktiver Stoffe (1. Strahlenschutzverordnung)
in der Fassung vom 15.10.1965
- /45/ Quittner, P. Gamma-Ray Spectroscopy.
Adam Hilger Ltd. London 1972
- /46/ Baedeker, P. A. Digital Methods of Photopeak
Integration in Activation
Analysis.
Anal. Chem. 43 (1971) 405
- /47/ Baba, H.,
Sekine, T.,
Baba, S.,
Okashita, H. A Method of the Gamma-Ray Spectrum
Analysis: FORTRAN IV Programs
"BOB73" for Ge(Li) Detectors and
"NAISAP" for NaJ(Tl) Detectors.
JAERI 1227 (1973)
- /48/ Recommendations of the International Commission on
Radiological Protection, ICRP Publ. 2
Pergamon Press 1959
- /49/ Burgkhardt, B.,
Piesch, E.,
Buijs, K.,
Vaane, J. Ein Fingerdosimeter für die
Messung von Neutronenstrahlung.
Strahlenschutz am Arbeitsplatz
(6. Jahrestagung des Fachverbands
für Strahlenschutz), Karlsruhe
1972

Verzeichnis der Formelzeichen

<u>Zeichen</u>	<u>Einheit</u>	<u>Bedeutung</u>
1. <u>Lateinische Buchstaben</u>		
A	s^{-1}	Aktivität
A_e	s^{-1}	Aktivität am Ende der Bestrahlungszeit
a		Parameter der Stufenfunktion
b		Parameter der Gaußfunktion
C	$\text{remh}^{-1}\text{cm}^2\text{s}$	Dosiskonstante
D	rem	Äquivalenzdosis
\dot{D}	rem h^{-1} , rem min^{-1}	Dosisrate
\dot{D}_{ber}	rem min^{-1}	berechnete Dosisrate
\dot{D}_{gem}	rem min^{-1}	gemessene Dosisrate
d	cm	Abstand der Detektoren
E	MeV	Energie
E_n	MeV	Energie der Neutronen
E_s	MeV	Schwellenergie
E_γ	keV, MeV	Energie der γ -Quanten
E_{de}	MeV	Energie des Double-escape-Peaks
E_{se}	MeV	Energie des Single-escape-Peaks
e		Basis der natürlichen Logarithmen
F		Fläche unter der Gaußkurve
f_A		Ausbeutefaktor des Detektorsystems
h		Isotopenhäufigkeit
I		Zahl der γ -Quanten pro 100 Neutroneneinfänge bzw. pro 100 Zerfälle

I_p		Zahl der γ -Quanten pro 100 Neutroneneinfänge (prompte Messung)
I_v		Zahl der γ -Quanten pro 100 Zerfälle (verzögerte Messung)
l	mm	lichte Höhe der Hohlzylinder
l_1	} mm	Kantenlängen des Quaders
l_2		
l_3		
M	kg kmol ⁻¹	Atomgewicht
m	kg	Masse
N		Zahl der Atomkerne
N		Zahl der Neutronen (Gl. 18)
N_1		Zahl der aktivierten Kerne
N_L	kmol ⁻¹	Loschmidt'sche Zahl
n		Exponent in der Stufenfunktion
Q_n	s ⁻¹	Neutronenquellstärke
r	mm, cm	Abstand Quelle - Bestrahlort
r_1	mm	innerer Radius der Probenzylinder
r_2	mm	äußerer Radius der Probenzylinder
s		Standardabweichung
T	min	Halbwertszeit
t	s	Zeit
t_b	s	Bestrahlungszeit
t_m	s	Meßzeit
t_w	s	Wartezeit
t_1	s	Beginn der Meßzeit
t_2	s	Ende der Meßzeit
V_i	cm ³	Teilvolumen

VK		Variationskoeffizient
v		Varianz
w ₁	mm	Wandstärke der Hohlzylinder
w ₂	mm	Wandstärke des Quaders
x	cm	Ortskoordinate
x		Kanalnummer bei γ -Spektren
x ₀		Kanalnummer des Peakzentrums
y	cm	Ortskoordinate
y		Zahl der Impulse im Kanal x
Z		Zahl der Neutroneneinfänge bzw. Zerfälle
\bar{Z}		geschätzte Impulszahl im Gesamtvolumen
Z _i		gemessene Impulszahl im Teilvolumen V _i
Z _B		gemessene Bruttoimpulszahl
Z _N		gemessene Nettoimpulszahl (Peakfläche)
Z _R	min ⁻¹	gemessene Impulsrate
Z _U		gemessene Impulszahl im Untergrund
z	cm	Ortskoordinate

2. Griechische Buchstaben

λ	min ⁻¹	Zerfallskonstante
σ	cm ²	Wirkungsquerschnitt von Kernreaktionen
σ		Parameter der Gaußfunktion (Gl. 20)
ϕ_n	cm ⁻² s ⁻¹	Neutronenflußdichte

1. Einleitung

Das Skelett ist nicht nur Stützorgan des Körpers, sondern in seiner Eigenschaft als Mineralreserve des Organismus an vielen Stoffwechselfvorgängen direkt und indirekt beteiligt /1/. Das führt dazu, dass Änderungen im Mineralgehalt des Skeletts nicht nur durch Erkrankungen des Knochens auftreten, sondern ebenso als Begleit- und Folgeerscheinungen zahlreicher anderer Krankheiten. So können Störungen des Mineralstoffwechsels (z.B. durch chronische Niereninsuffizienz), des Vitaminstoffwechsels (z.B. bei Mangel an Vitamin D) und des Hormonhaushalts (z.B. bei Erkrankungen der Schilddrüse) zu erheblichen Veränderungen im Knochen führen. Solche Änderungen bestehen meist in einer Abnahme des Mineralgehalts; als Folge davon wird die Stützfunktion des Skeletts beeinträchtigt und es können spontane Frakturen auftreten. Daher kommt der Früherkennung einer Demineralisation große Bedeutung zu, damit rechtzeitig therapeutische Maßnahmen eingeleitet werden können. Außerdem ist es wichtig, Änderungen über längere Zeiträume hinweg zu verfolgen, um ein Fortschreiten der Erkrankung und die Wirksamkeit der Therapie zu erkennen.

Verminderungen im Mineralgehalt des Skeletts sind weit verbreitet. Nach einer Schätzung ist bei mehr als 10% aller Bundesbürger mit einer Osteoporose zu rechnen /2/. Andererseits hieß es noch vor wenigen Jahren, die Situation auf dem Gebiet der Diagnostik der Osteoporose sei "noch unbefriedigend" /3/. Ein anderer Autor kam zu dem Schluß, daß "der Weg zur breiteren Einführung der quantitativen Radiologie zur Mineralsalzbestimmung des Knochens zur Zeit noch nicht genügend geebnet" sei /4/.

Diese Aussagen unterstreichen die Notwendigkeit der Entwicklung geeigneter Verfahren zur Früherkennung und regelmäßigen Kontrolle einer Demineralisation des Knochens.

2. Darstellung der Methoden zur Bestimmung des Mineralgehalts und Zielsetzung der vorliegenden Arbeit

Die Bestimmung des Mineralgehalts muß in vivo vorgenommen werden, das heißt am lebenden Menschen. Daher sind chemische Analyseverfahren (vor allem im Hinblick auf eine mehrfache Bestimmung) ungeeignet, da hierzu Knochenproben aus dem Körper entnommen werden müssen. Aus der Analyse von Blutproben können keine Rückschlüsse auf den Mineralgehalt im Knochen gezogen werden, da zwischen den Konzentrationen von Kalzium im Blut und im Knochen kein unmittelbarer Zusammenhang besteht. Daher sind nur physikalische Methoden geeignet, die am Menschen direkt anwendbar sind.

Die zahlreichen Verfahren, die bis heute zur In-vivo-Bestimmung des Mineralgehalts im Knochen oder einer äquivalenten Größe entwickelt wurden, lassen sich in 3 Gruppen einteilen:

- radiologische Verfahren
- Messung der Absorption von γ -Strahlen
- Neutronenaktivierungsanalyse

Die Grundzüge und Anwendungen der wichtigsten Varianten dieser Methoden werden im folgenden kurz skizziert.

2.1. Radiologische Verfahren

Mit herkömmlichen Röntgenaufnahmen kann eine Demineralisation erst sicher erkannt werden, wenn eine Abnahme des Mineralgehalts um etwa ein Drittel erfolgt ist /5/. Daher wurden verfeinerte Verfahren entwickelt, die eine frühere Aussage ermöglichen. In /6/ wird eine Übersicht über die gebräuchlichsten Verfahren gegeben.

Bestimmung metrischer Indices

Aus Röntgenaufnahmen können die geometrischen Abmessungen eines Knochens ermittelt werden. Durch Ausmessen der Dicke von Kompakta und Spongiosa, d.h. den Rand- und Kernbereichen des Knochens, können Aussagen über den Mineralgehalt gemacht wer-

den /7,8/. Dabei treten jedoch subjektive Meßfehler auf; außerdem sind Änderungen im Mineralgehalt auch ohne Volumänderungen des Knochens möglich.

Vergleichende Schwärzungsmessung

Bei diesem Verfahren werden ein Knochen und ein Referenzkörper gleichzeitig durchstrahlt. Der Referenzkörper hat die Form eines Keils oder einer Treppe und besteht aus knochenähnlichem Material, z. Beisp. aus einer Mischung von Hydroxylapatit und Kunstharz. Durch Vergleich der Filmschwärzung hinter dem Knochen und dem Referenzkörper kann ein Mineraläquivalentwert ermittelt werden /9,10/. Es ist jedoch zu fragen, inwieweit die Zusammensetzung solcher Referenzkörper tatsächlich dem Knochenaufbau entspricht.

Messung mit zwei Strahlenqualitäten

Röntgenstrahlen unterschiedlicher Wellenlänge werden vom Gewebe unterschiedlich absorbiert. Durch vergleichende Messungen der Filmschwärzung im Knochen und im benachbarten Weichteilgewebe bei Verwendung von zwei verschiedenen Hochspannungen (z. Beisp. 60 kV und 150 kV) können Aussagen über den Mineralgehalt gewonnen werden. Dieses Verfahren wird zur Messung an Wirbelkörpern angewandt /11/. Auch hier wird ein Referenzkörper verwendet. Die Schwärzungsunterschiede zwischen Knochen und Weichteilgewebe sind bei hohen Röhrenspannungen gering und verursachen daher größere Meßfehler.

Eine generelle Schwierigkeit bei der Densitometrie mit Röntgenstrahlen bereitet die Tatsache, daß Inhomogenitäten im Körpergewebe das Röntgenspektrum verändern und zu Änderungen in der Schwärzungsverteilung führen /12/.

2.2. Absorption von γ -Strahlung

Nach dieser Methode wird die Schwächung der γ -Strahlung beim Durchgang durch das Gewebe gemessen. Ein fein ausgeblendeter, monoenergetischer Photonenstrahl wird über den Knochen hinweg

geführt und mit einem gegenüberliegenden Detektor gemessen. Als Strahlenquelle wird meist J-125 verwendet ($E_{\gamma} = 28 \text{ keV}$). Die verschiedenen Anteile der Absorption in den einzelnen Materialien (Luft, Fett, Muskelgewebe, Knochen) können durch eine einzige Messung nicht getrennt erfaßt werden; daher sind gewisse Voraussetzungen notwendig (z. Beisp. Annahme eines elliptischen Knochenquerschnitts /13/). Durch die Verwendung von zwei Radionukliden mit unterschiedlichen Energien der Strahlung (z. Beisp. zusätzlich Am-241 mit $E_{\gamma} = 60 \text{ keV}$) können diese Schwierigkeiten weitgehend beseitigt werden /14/. Die Anwendung dieser Methode ist auf dünne Knochen beschränkt (Finger oder Unterarm). Eine Übersicht über die gebräuchlichsten Verfahren wird in /6/ gegeben; außerdem ist eine umfangreiche Bibliographie erschienen /15/.

Die bisher genannten densitometrischen Verfahren liefern einen globalen Meßwert über den gesamten durchstrahlten Körperbereich mit Einflüssen aller darin enthaltenen Komponenten. Daraus können knochenspezifische Parameter nur durch Annahmen über Form oder Zusammensetzung des Knochens abgeleitet werden.

2.3. Neutronenaktivierungsanalyse

Die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) wurde 1964 erstmals als In-vivo-Methode zur Bestimmung von Elementen im Gesamtkörper vorgestellt /16/. Die Autoren verwendeten dabei eine Methode, wie sie im Strahlenschutz üblich ist. Wird eine Person durch einen Unfall oder ein sonstiges Ereignis einer unbekanntem Neutronenstrahlung ausgesetzt, so wird die Aktivität des erzeugten radioaktiven Nuklids Na-24 im Körper gemessen. Aus dem angenommenen Natriumgehalt des Körpers kann auf die Größe der applizierten Dosis geschlossen werden. Umgekehrt kann man aus der Messung der Aktivität an Na-24, die durch eine definierte Neutronenstrahlung induziert wurde, den Gesamtgehalt an Natrium im Körper errechnen.

Dieses Verfahren wurde von anderen Arbeitsgruppen in England, in den USA und in Frankreich aufgegriffen und in mancherlei

Abwandlungen erfolgreich zur In-vivo-Bestimmung verschiedener Elemente im Körper angewandt /17/.

Die NAA besitzt einige günstige Eigenschaften, die diese Methode für In-vivo-Messungen gut geeignet erscheinen lassen. Da die NAA mit durchdringenden Strahlen arbeitet, brauchen keine Proben aus dem Körper entnommen zu werden. Eine Messung kann beliebig oft wiederholt werden (nur begrenzt durch die Dosis), ohne Eingriffe am Patienten durchführen zu müssen. Die induzierte Aktivität ist ein direktes Maß für die Konzentration des zu messenden Elements und unabhängig von der chemischen Form, in der es im Körper vorliegt.

Im folgenden sollen an einigen ausgewählten Beispielen verschiedene Möglichkeiten und Anwendungsbereiche der NAA aufgezeigt werden.

In den ersten Jahren der Untersuchungen zur In-vivo-Technik standen Großgeräte zur Neutronenerzeugung, wie sie in Forschungslaboratorien zur Verfügung stehen, im Vordergrund. So verwendeten Anderson et al. /16/ einen Linearbeschleuniger, in dem Deuteronen nach ihrer Beschleunigung auf hohe Energie auf ein tritiumhaltiges Target geschossen wurden. Die dadurch erzeugten Neutronen hatten eine Energie von 14 MeV. Nelp et al. /18/ erzeugten die Neutronen in einem Zyklotron, das Deuteronen auf 22 MeV beschleunigte und auf ein Be-Target lenkte. Das ergab eine mittlere Neutronenenergie von 8 MeV. Ein ähnliches Verfahren wurde von Chamberlain /19/ angewandt. Er gibt die Flußdichte des schnellen Anteils in 2 m Entfernung von der Quelle mit 10^5 Neutronen/cm²s an. Comar et al. /20/ benutzten die thermischen Neutronen, die am Fenster ihres Reaktors austraten, zur Aktivierung von Na, Ca und P.

Diese Großgeräte weisen verschiedene Nachteile auf. Zum einen sind sie teuer und erfordern zum Betrieb viel Personal und einen erheblichen Aufwand. Daher können solche Geräte nur in wenigen Laboratorien eingesetzt werden. Eine breitere Anwendung der NAA ist dadurch nicht möglich. Zum anderen sind diese Geräte relativ starr und unbeweglich. Das untersuchte Objekt

muß den Gegebenheiten der Neutronenquelle angepaßt werden, was bei Messungen an Personen nicht günstig ist. So mußten z.B. bei Anderson die Patienten auf einem Kreisbogen mit einem Radius von 1,1 m liegen, damit eine gleichförmige Aktivierung über den gesamten Körper erzielt werden konnte.

Eine Alternative zu den Großgeräten stellen Neutronengeneratoren dar, wie sie Boddy et al. /21/ in ihrer Anlage verwenden. Ein Neutronengenerator ist ein kleiner Linearbeschleuniger, in dem Deuteronen auf einer Strecke von etwa 50 cm hoch beschleunigt und auf ein tritiumhaltiges Target geschossen werden. Die erzeugten Neutronen besitzen eine Energie von 14 MeV. Das Gerät ist klein und kompakt, besitzt eine hohe Neutronenausbeute (10^8 bis 10^{10} Neutronen/s) und bedarf während des Betriebs keiner Wartung.

Die Neutronenquellstärke ist beim Generator oftmals nicht genügend konstant. Daher muß bei jeder Bestrahlung der Neutronenfluß gemessen oder gleichzeitig ein Standard aktiviert werden, der anschließend ausgemessen wird. Dieser Nachteil wird durch die Verwendung von sogenannten Isotopenquellen vermieden. Als solche kommen Gemische aus einer α -strahlenden Substanz (zum Beispiel Am-241 oder Pu-238) und Beryllium in Frage. Cohn et al. /22/ verwendeten 14 solcher (α ,n)-Quellen mit einer Aktivität von je 50 Ci (das entspricht einer Quellstärke von 10^8 Neutronen/s pro Quelle) bei einer mittleren Energie der Neutronen von 5 MeV. Durch eine geeignete räumliche Verteilung der Quellen konnte ein gleichförmiger Neutronenfluß im gesamten Körper erreicht werden.

Seit wenigen Jahren steht mit Cf-252 ein Neutronenstrahler zur Verfügung, der eine hohe Quellstärke bei noch kleinerem Volumen als (α ,n)-Quellen aufweist. Dieses Radioisotop wird durch Bestrahlung von Transplutoniumelementen (Am-243 oder Cm-244) mit thermischen Neutronen erzeugt. Mit dieser Neutronenquelle kann ein weiterer Schritt zur breiteren Anwendung der NAA in der Klinik getan werden. Bisher sind die Anwendungsmöglichkeiten von Cf-252 noch wenig untersucht worden. Lediglich

Boddy /23/ hat sich ausführlicher damit beschäftigt. In seiner Arbeit beschreibt er theoretische und experimentelle Voruntersuchungen zur Bestimmung von J in der Schilddrüse und Ca oder P im Knochen.

Parallel zum Übergang von großen zu kleineren, kompakten Neutronenquellen ist eine andere Entwicklung zu beobachten. Während zunächst vorwiegend die Elementgehalte im gesamten Körper bestimmt wurden (im wesentlichen Ca, Na, Cl und N), rückten in den letzten Jahren Messungen an Teilbereichen des Körpers stärker in den Vordergrund. McNeill /24/ begründete dieses Vorgehen damit, daß für Verlaufsmessungen zur Kontrolle des Ca-Gehalts über mehrere Monate hinweg eine Aktivierung des Rumpfes ausreiche. Die Gruppe um Catto /25/ bestrahlte die Hand mit einer Am-Be-Quelle, um den Ca-Gehalt zu messen; die Quellstärke betrug dabei $5,5 \cdot 10^7$ Neutronen/s. In jüngster Zeit wurde auch ein Verfahren zur Ca-Bestimmung in der Wirbelsäule entwickelt, wobei hier ein Beschleuniger eingesetzt wurde /26/.

2.4. Formulierung der Aufgabe

Die geschilderte Entwicklung der NAA in ihrer Anwendung als In-vivo-Methode läßt es sinnvoll erscheinen, die Möglichkeiten von Cf-252 als Neutronenquelle weiter zu untersuchen. Dabei wird der allgemeinen Tendenz folgend ein Teilbereich des Körpers als Meßobjekt gewählt.

Die medizinisch günstigste Meßstelle ist noch umstritten /27/; während einige Autoren die Bedeutung des Stammskeletts bei einer beginnenden Demineralisation betonen /28/, bevorzugen andere die Extremitäten /6/. Dabei sind die Hände günstiger, da der Mineralgehalt in den Füßen durch die Gewichtsbelastung bzw. durch ihr Fehlen (z.B. bei Bettruhe) beeinflusst werden kann. In jüngsten Untersuchungen /29/ wurden bei Osteoporose-Patienten vergleichende Messungen durchgeführt, wobei mit der NAA der Ganzkörpergehalt an Ca sowie lokal an Unterarm und Oberschenkel die Absorption von γ -Strahlung gemessen wurde. Es ergaben sich hohe Korrelationen zwischen verschiedenen Meßorten und den beiden Meßmethoden.

Da die Wahl der Meßstelle nach dieser Arbeit nicht die entscheidende Rolle spielt, bietet sich für eine Mineralgehaltsbestimmung mit Cf-252 die Hand als Meßobjekt an. Hier ist der apparative Aufwand relativ gering und das Problem der Dosisbelastung verhältnismäßig leicht zu lösen.

Der Knochen enthält in seinem anorganischen Teil im wesentlichen die Elemente Kalzium und Phosphor, die überwiegend als Hydroxylapatit vorliegen. Das Verhältnis dieser beiden Hauptelemente ist im gesunden Knochen sehr gut konstant /30/. Bei Stoffwechselstörungen kann sich jedoch der Ca/P-Wert verändern. Da die NAA die einzige In-vivo-Methode ist, mit deren Hilfe die einzelnen Elemente unabhängig von ihrer chemischen Verbindung bestimmt werden können, liegt es nahe, diese beiden Komponenten gleichzeitig zu messen.

Die interindividuellen Schwankungen im Mineralgehalt sind sehr groß, daher haben Absolutbestimmungen nur eine begrenzte Aussagekraft. Außerdem ist die Bestimmung des Absolutwerts mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden, da hierbei der Einfluß einer Vielzahl von Parametern bekannt sein muß (z. Beisp. Dicke und Fettanteil des Gewebes, Größe des untersuchten Bereiches, etc.). Daher kommt Relativmessungen, die an einer Person in regelmäßigen Abständen über längere Zeit hinweg durchgeführt werden und eine Kontrolle des Mineralgehalts erlauben, eine größere Bedeutung zu. Aus diesem Grund wird bei der Entwicklung eines Verfahrens darauf geachtet, daß mehrere Messungen im Jahr an einer Person möglich sind.

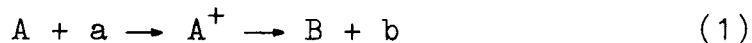
3. Grundlagen der Aktivierungsanalyse /31,32,33/

Ziel der Aktivierungsanalyse ist es, über ausgelöste Kernreaktionen Stoffe zu aktivieren und dabei Strahlung zu erzeugen, die sich quantitativ nachweisen läßt und deren Intensität in einer bekannten Beziehung zur Menge des zu analysierenden Elements steht. Die Aktivierungsanalyse umfaßt damit grundsätzlich zwei Schritte:

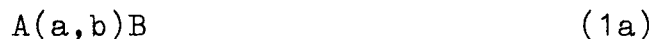
- 1) Aktivierung einer gegebenen Probe durch Beschuß mit energiereichen Teilchen;
- 2) Nachweis der auftretenden Strahlung mit nachfolgender qualitativer und quantitativer Auswertung.

3.1. Aktivierung /34/

Ein Kern A wird mit einem energiereichen Partikel a (z. Beisp. p, d, α , γ , n) beschossen. Dabei entsteht ein Zwischenkern A^+ in einem hochangeregten Zustand mit sehr kurzer Lebensdauer. Dieser zerfällt in einen Kern B und in ein Teilchen b (zum Beisp. p, d, α , γ , n), das die abgegebene Energie als kinetische Energie mitführt. Dieser Vorgang läßt sich schematisch in einer Reaktionsgleichung beschreiben:



oder in Kurzform:



Im Verlauf von Kernreaktionen kann Energie verbraucht oder frei werden. Der Betrag der verbrauchten bzw. frei werdenden Energie hängt von den Kernmassen A und B sowie von der Art der Teilchen a und b ab. Damit die Reaktion abläuft, muß das eingeschossene Teilchen a im allgemeinen eine bestimmte Mindestenergie besitzen, die der Schwellenergie E_s der Reaktion entspricht.

Der Wirkungsquerschnitt σ einer Kernreaktion gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit die betreffende Kernumwandlung stattfindet. Er ist eine Funktion der Energie des eingeschossenen Teilchens. Bei bestimmten Energien können sogenannte Resonanzen auftreten mit relativ hohen Werten von σ .

Kernreaktionen mit Neutronen spielen in der Aktivierungsanalyse eine wichtige Rolle. Es sind sehr viele dieser Reaktionen bekannt, da Neutronen infolge ihrer fehlenden elektrischen Ladung leicht in alle Kerne eindringen können. Außerdem stehen mehrere geeignete Neutronenquellen zur Verfügung. Die wichtigsten Reaktionen werden nachstehend kurz skizziert.

- 1) Bei der (n,γ) -Reaktion wird ein Neutron durch einen Kern eingefangen; die frei werdende Energie wird durch ein γ -Quant abgegeben. Diese Reaktion erfolgt vorzugsweise mit thermischen Neutronen ($E_n < 0,1$ eV) und weist bei einigen Kernen große Werte σ auf.
- 2) Die (n,p) -Reaktion geht im allgemeinen nicht mit langsamen Neutronen vor sich, da zum Austritt des Protons aus dem Kern eine Schwelle überwunden werden muß.
- 3) Auch für die (n,α) -Reaktion, die zur Emission von α -Teilchen führt, sind im allgemeinen schnelle Neutronen erforderlich.
- 4) Bei der $(n,2n)$ -Reaktion werden durch ein eingeschossenes Neutron zwei Neutronen freigesetzt. Dazu sind hohe Energien des geschossenen Neutrons notwendig.

3.2. Nachweis der Strahlung

Zum Nachweis der beim Ablauf der verschiedenen Kernreaktionen auftretenden Strahlung und zur quantitativen Analyse bieten sich zwei Möglichkeiten an:

- 1) Nachweis und Messung der Partikel b, die beim Zerfall der gebildeten Zwischenkerne emittiert werden (prompte Strahlung);
- 2) Nachweis und Messung der von den entstehenden Kernen B emittierten Strahlung (im folgenden als "verzögerte" Strahlung bezeichnet).

3.2.1. Nachweis der prompten Strahlung

Sind N Kerne vorhanden, die für die betreffende Reaktion einen Wirkungsquerschnitt σ besitzen, und ist Φ_n die Flußdichte der Neutronen, so ist die Zahl der pro Zeiteinheit entstehenden und wieder zerfallenden Zwischenkerne gegeben durch

$$A = N\sigma\Phi_n \quad (2)$$

Gemessen wird die Impulsrate der emittierten Partikel b oder ihre absolute Zahl während einer bestimmten Zeit.

Als Vorteil dieser Methode ist zu werten, daß die Impulsrate unabhängig von der Bestrahlungs- und Meßzeit ist. Da jedoch die Messung während der Bestrahlung erfolgt, befinden sich die Detektoren in unmittelbarer Nähe der Neutronenquelle und müssen gegen die Neutronen- und die γ -Strahlung der Quelle gut abgeschirmt werden. Um die Zahl der störenden Impulse zu reduzieren, können zusätzlich spezielle elektronische Schaltungen benutzt werden (z.B. Messung in Antikoinzidenz). Diese Maßnahmen erfordern jedoch einen hohen Aufwand.

3.2.2. Nachweis der verzögerten Strahlung

Die bei einer Kernreaktion entstehenden Kerne B sind im allgemeinen radioaktiv und gehen unter Emission von β -Strahlung in einen anderen Kern über. Der beim Zerfall zunächst erreichte Zustand ist meistens angeregt; beim Übergang in den Grundzustand werden zusätzlich γ -Quanten emittiert (vgl. die Abbildungen 1 und 2).

Die Zahl N_1 der bei der Aktivierung pro Zeiteinheit entstehenden Kerne B ist nicht konstant, sondern nimmt ab, da die aktivierten Kerne schon während der Bestrahlung zerfallen. Es gilt die Beziehung

$$\frac{dN_1}{dt} = N\sigma\phi_n - \lambda N_1 \quad (3)$$

Dabei ist λ die Zerfallskonstante des betreffenden Radionuklids⁺). Als Integral dieser Gleichung erhält man

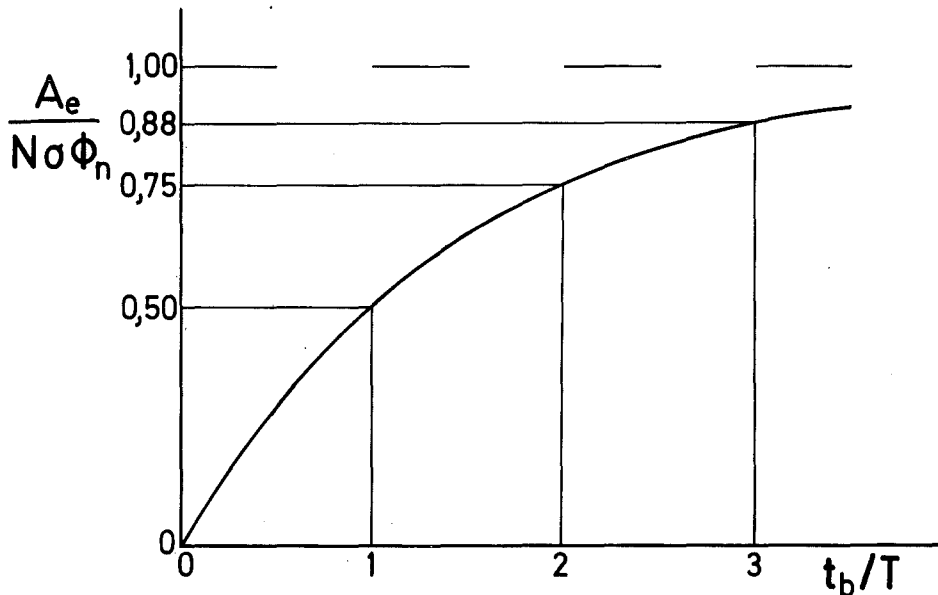
$$N_1 = \frac{N\sigma\phi_n}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (4)$$

Am Ende der Bestrahlungszeit t_b sind $N_1(t_b)$ aktive Kerne vorhanden; ihre Aktivität ist gegeben durch

$$A_e = \lambda N_1(t_b) = N\sigma\phi_n (1 - e^{-\lambda t_b}) \quad (5)$$

+) Die Zerfallskonstante λ und die Halbwertszeit T sind über die Beziehung $\lambda T = \ln 2$ miteinander verknüpft.

Die Messung erfolgt hier nach der Bestrahlung. Die erreichte Aktivität ist abhängig von der Bestrahlungszeit und von der Zerfallskonstante der erzeugten Kerne.



Der Zeitfaktor in Gl. 5, der die Exponentialfunktion enthält, ist stets kleiner als 1 und beschreibt das asymptotische Verhalten der Aktivierung. Die Aktivität steigt zunächst rasch an (bei $5T$ sind bereits 97% der Sättigungsaktivität vorhanden), erreicht jedoch ihren maximalen Wert erst bei unendlich langer Bestrahlungsdauer. Eine längere Bestrahlung als $2T$ ist im allgemeinen wenig sinnvoll.

Für jedes Isotop sind im allgemeinen mehrere Kernreaktionen möglich; bei einem Element mit mehreren stabilen Isotopen erhöht sich diese Zahl entsprechend. Bei einer gegebenen Masse m des bestrahlten Elements mit dem Atomgewicht M und einer Häufigkeit h des verwendeten Isotops ist die Zahl N der Atome, die eine bestimmte Kernreaktion durchführen können, gegeben durch

$$N = \frac{m N_L h}{M} \quad (6)$$

Damit ist die Aktivität des Elements, bezogen auf eine spezielle Kernreaktion mit einem seiner Isotope, direkt proportional zur Masse dieses Elements und ergibt sich insgesamt zu

$$A_e = \frac{m N_L h}{M} \sigma \phi_n (1 - e^{-\lambda t_b}) \quad (7)$$

Durch Messung der Aktivität kann mit Hilfe dieser Gleichung die Masse m des gesuchten Elements berechnet werden. Da der Wirkungsquerschnitt σ und die Neutronenflußdichte ϕ_n im allgemeinen nicht hinreichend genau bekannt sind, muß eine Vergleichsmessung mit einer Probe bekannter Zusammensetzung durchgeführt werden. Absolute Meßwerte sind in der Aktivierungsanalyse daher immer auf solche Standards bezogen.

3.2.3. Messung von γ -Strahlung /35,36,37/

Im allgemeinen werden in der Aktivierungsanalyse Reaktionen bevorzugt, die über eine der beiden geschilderten Nachweismethoden eine Messung von γ -Strahlung ermöglichen. Die emittierten γ -Quanten besitzen charakteristische Energien, die eine eindeutige Identifizierung des betreffenden Radionuklids erlauben. Durch die Messung der Zahl der Quanten einer bestimmten Energie ist eine selektive und quantitative Bestimmung eines Elements möglich.

Die gebräuchlichsten Nachweisgeräte zur Messung von γ -Strahlung sind Szintillationsdetektoren (z.Beisp. NaJ(Tl)) und Halbleiterdetektoren (z.Beisp. Ge(Li)). Ihre Güte wird durch die Ansprechwahrscheinlichkeit und das Energieauflösungsvermögen charakterisiert. Die Ansprechwahrscheinlichkeit gibt an, welcher Bruchteil der von einer Probe emittierten Quanten im Detektor registriert wird; sie ist von der Energie der Strahlung und von der Art und Größe des Detektors abhängig. Das Auflösungsvermögen ist ein Maß für die Breite eines Peaks. Beim Vergleich der beiden Detektorarten gilt allgemein: Szintillationsdetektoren haben eine etwa 10mal höhere Ansprechwahrscheinlichkeit; bei Halbleiterdetektoren ist das Auf-

lösungsvermögen wesentlich besser (ca. 5 keV gegenüber ca. 60 keV bei $E_\gamma = 662$ keV).

Die γ -Quanten, die in einen Detektor gelangen, geben dort ihre Energie vollständig oder teilweise ab und erzeugen dadurch elektrische Impulse, deren Größe proportional zur abgegebenen Energie ist. Im Vielkanalanalysator wird die Impulshöhenverteilung sichtbar gemacht. Ein solches Energiespektrum ist in Abb. 21 dargestellt. Es enthält mehrere Peaks, die auf verschiedene Prozesse im Detektor zurückzuführen sind. Der Photoeffekt bewirkt eine vollständige Übertragung der Energie E_γ der Quanten an das Detektormaterial. Dieser Photopeak bei E_γ wird zur Auswertung verwendet. Bei γ -Energien oberhalb 1 MeV tritt zusätzlich der Paarbildungseffekt auf, der durch die Entstehung eines Elektron-Positron-Paars hervorgerufen wird. Er führt zu zwei Nebenpeaks bei $E_{se} = E_\gamma - 0,51$ MeV und $E_{de} = E_\gamma - 1,02$ MeV (Single-escape-Peak bzw. Double-escape-Peak). Infolge des Comptoneffekts geben einige γ -Quanten nur einen Teil ihrer Energie an die Elektronen des Detektormaterials ab. Dadurch entsteht unterhalb der Energie E_γ ein Kontinuum.

Außer den genannten Komponenten enthält ein Spektrum noch die Einflüsse aus der Umgebung (natürliche Radioaktivität der Luft, Höhenstrahlung, Streueffekte in der Abschirmung, usw.), die durch die Abschirmung der Meßzelle nicht vollständig eliminiert werden können. Dieser Untergrund ist im wesentlichen ein Kontinuum, das mit wachsender Energie abnimmt. In betonabgeschirmten Meßräumen tritt als Einzelpeak vor allem das natürlich vorkommende Radionuklid K-40 mit einer γ -Energie von 1,46 MeV auf.

Messung der prompten γ -Quanten

Nach Gl. 2 ist die Zahl der während der Bestrahlungszeit t_b zerfallenden Zwischenkerne A^+ gegeben durch

$$Z = A \cdot t_b = N \sigma \Phi_n t_b \quad (8)$$

Um daraus die Zahl der registrierten Impulse im Detektor zu erhalten, müssen zwei Faktoren eingeführt werden.

Nicht jeder Zerfallsakt führt zur Emission eines γ -Quants. Die Größe I_p gibt die Zahl der γ -Quanten an, die beim Zerfall von 100 Zwischenkernen emittiert werden.

Der Ausbeutefaktor f_A gibt an, welcher Bruchteil der emittierten Quanten vom Detektorsystem absorbiert wird. Er ist von der Ansprechwahrscheinlichkeit, der Zahl und der Anordnung der Detektoren abhängig.

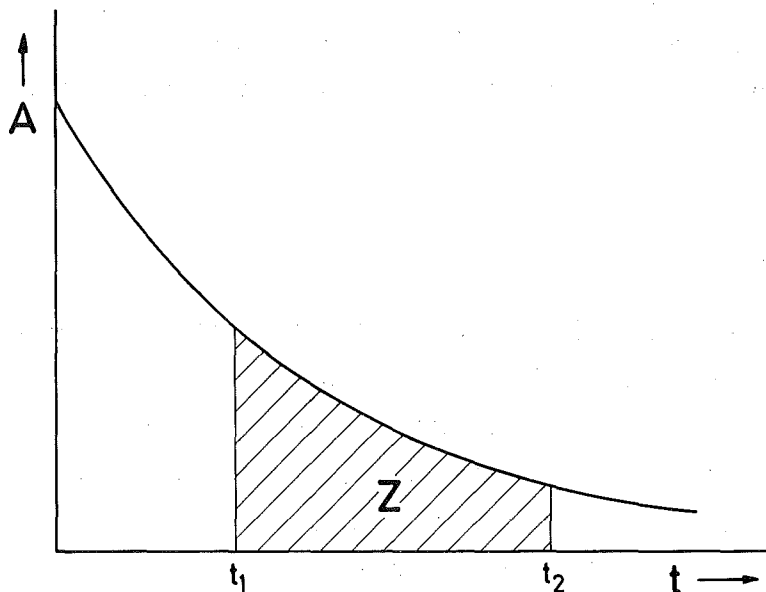
Damit erhält man für die Zahl der gemessenen Impulse

$$Z_N = f_A I_p N \sigma \Phi_n t_b \quad (9)$$

Messung der verzögerten γ -Quanten

Die Aktivität der erzeugten Radionuklide nimmt nach dem Ende der Bestrahlung stetig ab nach der Beziehung

$$A(t) = A_e \cdot e^{-\lambda t} \quad (10)$$



Nach einer Wartezeit $t_w = t_1$ ergibt sich die Zahl Z der Zerfälle als Zeitintegral über die Meßzeit $t_m = t_2 - t_1$ zu

$$Z = \int_{t_1}^{t_2} A(t) dt \quad (11)$$

Analog zur prompten Messung wird die Zahl der γ -Quanten einer bestimmten Energie E_γ , die bei 100 Zerfällen emittiert werden, durch I_γ angegeben.

Durch Integration der Gl. 11 erhält man damit für die Zahl der gemessenen Impulse

$$Z_N = f_A I_\gamma \frac{N \sigma \phi_n}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_b}) e^{-\lambda t_w} (1 - e^{-\lambda t_m}) \quad (12)$$

Für die Messung ergeben sich aus dieser Gleichung zwei Folgerungen:

- 1) Die Zahl der emittierten Quanten nimmt mit zunehmender Wartezeit ab. Bei schwacher Aktivität ist daher die Wartezeit möglichst klein zu halten.
- 2) Die Zahl Z_N strebt ähnlich wie die Aktivierung einer oberen Grenze zu. Daher wird die Dauer der Messung von der Halbwertszeit des zerfallenden Radionuklids bestimmt. Eine Meßzeit von mehr als $2T$ ist im allgemeinen nicht sinnvoll, da für längere Zeiten der relative Anteil des Untergrunds zu groß wird.

Zählstatistik

Der radioaktive Zerfall und das Zählen von Impulsen unterliegen statistischen Gesetzen. Bei der Poissonverteilung, die hier anzuwenden ist, ist die Varianz der gemessenen Impulszahl gleich der Impulszahl selbst. Die gemessene Bruttoimpulszahl Z_B setzt sich zusammen aus der Nettoimpulszahl Z_N (Peakfläche) und dem Untergrund Z_U . Alle drei Größen sind mit Fehlern behaftet.

Die Varianz von

$$Z_N = Z_B - Z_U \quad (13)$$

ist daher gegeben durch

$$v = Z_B + Z_U \quad (14)$$

Durch Ersetzen von Z_B erhält man

$$v = Z_N + 2Z_U \quad (15)$$

Die Standardabweichung der Nettoimpulszahl ist die Wurzel aus der Varianz:

$$s = \sqrt{Z_N + 2Z_U} \quad (16)$$

Als relatives Maß für die Streuung ist der Variationskoeffizient definiert durch

$$VK = \frac{\sqrt{Z_N + 2Z_U}}{Z_N} \quad (17)$$

3.3. Störeinflüsse

Bei der Aktivierung von Proben, die im allgemeinen mehrere Elemente enthalten, treten Störungen verschiedener Art auf. Die wesentlichen seien im folgenden aufgeführt.

- 1) Bei der Bestrahlung der Kerne eines Isotops werden im allgemeinen mehrere Kernreaktionen ausgelöst. Durch die Vielzahl der Elemente, die zumeist aus mehreren Isotopen bestehen, finden in einer Probe viele Reaktionen statt, die zu zahlreichen γ -Quanten verschiedenster Energien führen und meßtechnische Schwierigkeiten bereiten können.
- 2) Das zur Messung benutzte Radionuklid kann zusätzlich von einem anderen als dem gesuchten Element erzeugt werden. Das führt zu einem systematischen Meßfehler, da hier ein überhöhter Elementgehalt vorgetäuscht wird.

Der Erfolg der Neutronenaktivierungsanalyse hängt davon ab, wie stark der Einfluß der genannten Störungen ist. Zunächst

ist daher zu fordern, daß sich die Energie der γ -Quanten, die zur Auswertung herangezogen werden, deutlich genug von den Energien der übrigen γ -Quanten unterscheidet; das heißt der Abstand benachbarter Peaks sollte größer sein als das Auflösungsvermögen des Detektors.

Ist diese Forderung nicht zu erfüllen oder sind Störungen nach Punkt 2) zu erwarten, so muß in Voruntersuchungen an bekannten Substanzen der Einfluß dieser Störungen bestimmt werden, damit eventuell Korrekturfaktoren ermittelt werden können.

4. In-vivo-Bestimmung von Kalzium und Phosphor in der Hand mit Cf-252

4.1. Aktivierung

Für jedes Element sind im allgemeinen mehrere Kernreaktionen mit Neutronen bekannt. Bei der Beurteilung dieser Reaktionen im Hinblick auf die zu messende Impulsausbeute spielen die spezifischen Daten der Reaktionen /38,39,40/ und das verwendete Meßverfahren eine wesentliche Rolle.

Kalzium

Das Element Ca hat insgesamt 6 stabile Isotope. Von den verschiedenen möglichen Kernreaktionen kommen für eine Aktivierung folgende in Frage:

- prompt: Ca-40 (n, γ) Ca-41
- verzögert: Ca-48 (n, γ) Ca-49

Messung	M	h	σ	E_γ	I	T
	g	%	b	MeV	%	min
prompt	40	97	0,40	6,4	28	-
verzögert	48	0,19	1,1	3,1	89	8,7

Die Daten für die beiden Reaktionen unterscheiden sich besonders in der Häufigkeit des betreffenden Isotops. Die Wirkungsquerschnitte liegen relativ hoch. Die kurze Halbwertszeit von Ca-49 ermöglicht kurze Bestrahlungs- und Meßzeiten (vgl. Abb.1).

Die übrigen stabilen Ca-Isotope führen zu ungünstigeren Daten (z.Beisp. keine Emission von γ -Quanten; wesentlich längere Halbwertszeiten; kleinere Häufigkeiten und Wirkungsquerschnitte).

Phosphor

P hat nur ein stabiles Isotop, für das folgende Reaktionen zur Aktivierung geeignet sind:

- prompt: P-31 (n, γ) P-32
- verzögert: P-31 (n, α) Al-28

Messung	M	h	σ	E_s	E_γ	I	T
	g	%	b	MeV	MeV	%	min
prompt	31	100	0,19	-	3,9	17	-
verzögert	31	100	0,002 ⁺	2	1,78	100	2,3

+) bei 5 MeV

Beide Reaktionen gehen vom gleichen Nuklid aus; sie unterscheiden sich im wesentlichen im Wirkungsquerschnitt. Er ist bei der verzögerten Messung zwar klein, aber das Produkt $h \cdot \sigma$ hat etwa den gleichen Wert wie bei Ca-48. Während für die prompte (n, γ)-Analyse thermische Neutronen benötigt werden, muß die Aktivierung über die (n, α)-Reaktion mit schnellen Neutronen erfolgen, deren Energie größer ist als die Schwellenergie von 2 MeV. Die Halbwertszeit von Al-28 ist mit 2,3 min ebenfalls kurz und daher für eine Schnellanalyse günstig (vgl. Abb. 2).

Die genannten Daten reichen allein nicht aus, um sich für eines der beiden Meßverfahren zu entscheiden. Folgende Gesichtspunkte sind noch zu berücksichtigen:

Bei der prompten Messung müssen im Gegensatz zur verzögerten Messung Halbleiter-Detektoren verwendet werden, da die Spektren sehr linienreich sind. Außerdem müssen die Detektoren in einiger Entfernung vom Meßobjekt aufgestellt werden, da zwischen Neutronenquelle und Detektor ausreichend Raum für eine Abschirmung vorhanden sein muß. Dadurch ist die Ausbeute bei der prompten Messung um etwa einen Faktor 100 kleiner als bei der verzögerten Messung.

Damit werden die aus den angeführten Daten ablesbaren Vorteile für die prompte Analyse in erster Näherung kompensiert. Wegen des meßtechnisch erheblich niedrigeren Aufwandes ist es daher naheliegend, sowohl für Ca als auch für P der verzögerten Messung den Vorzug zu geben.

4.2. Neutronenquelle und Bestrahlungsanlage

Als Neutronenquelle wird Cf-252 verwendet. Die Bestrahlungsanlage muß den Gegebenheiten dieser Quelle und anderen Anforderungen, wie sie die Geometrie der Hand und der Strahlenschutz stellen, entsprechen.

4.2.1. Eigenschaften von Cf-252

Cf-252, ein Isotop mit der Ordnungszahl 98, wird nach seiner Erzeugung in einem Hochflußreaktor (bei thermischen Flußdichten von etwa 10^{15} Neutronen/cm²s) aus dem Gemisch anderer Transplutonium-Elemente und verschiedener Spaltprodukte durch spezielle Extraktions- und Ionenaustauschverfahren isoliert. Am Ende der verschiedenen Aufbereitungsprozesse liegt es als Oxid vor.

Cf-252 zerfällt im wesentlichen unter Emission von α -Teilchen. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 3% findet außerdem eine spontane Spaltung statt, in deren Verlauf Neutronen und γ -Quanten emittiert werden. Die Quellstärke ist mit $2,3 \cdot 10^9$ Neutronen pro mg und s sehr hoch.

Die emittierten Neutronen haben eine ähnliche Energieverteilung wie Reaktorneutronen. Sie kann durch folgende Formel angenähert werden /41/:

$$N(E) = 0,373 \exp(-0,88 E) \sinh(2,0 E)^{1/2} \quad (18)$$

Dabei gibt $N(E)$ die Zahl der Neutronen pro Einheitsenergieintervall und E die Energie der Neutronen in MeV an. In Abb. 3 ist die Funktion $N(E)$ nach dieser Gleichung dargestellt.

Die emittierten γ -Quanten stammen vom Cf-Kern und von den zerfallenden Kernen der Spaltprodukte. 78% der γ -Quanten liegen im Energiebereich von 0 bis 1 MeV. Die Verteilung fällt dann sehr rasch ab; der Anteil der Quanten mit Energien zwischen 5 und 6 MeV beträgt noch etwa 0,04%.

In Tab. 1 sind die wichtigsten physikalischen Daten von Cf-252 zusammengestellt /42,43/.

Cf-252 besitzt gegenüber anderen Neutronenquellen wie Kernreaktoren, Beschleunigern und (α, n) -Quellen einige Vorteile, die vor allem in kleinen, kompakten Anlagen wichtig sind (vgl. Tab. 2). Das Verhältnis von Neutronenquellstärke und Volumen ist außerordentlich hoch, dabei ist jedoch die Wärmeentwicklung klein. Infolge der relativ geringen α -Ausbeute bleibt der sich aufbauende He-Druck ebenfalls gering. Die Kosten der Neutronenquelle (etwa 5000 DM für 100 μg Cf-252) sind in Bezug auf die hohe Neutronendichte niedrig, wenn auch die Halbwertszeit mit 2,6 Jahren etwas kurz ist. Da Cf-252 als Pulver und in Form von Draht in Mengen von 1 μg bis einige mg erhältlich ist, kann die Geometrie der Neutronenquellen den verschiedenen Anforderungen entsprechend ausgebildet werden.

4.2.2. Umgang mit Cf-252

Infolge der hohen spezifischen Radioaktivität sind beim Umgang mit Cf-252 besondere Sicherheitsmaßnahmen zu beachten /41,42/.

Zunächst muß verhindert werden, daß Cf-252 und die Spaltpro-

dukte aus der Quelle in die Umgebung austreten. Das geschieht durch zwei Kapseln, die die Quelle umhüllen und α -dicht verschweißt sein müssen. Als Kapselmaterial hat sich Zircalloy bewährt, da es den hohen mechanischen Anforderungen genügt und günstige physikalische Eigenschaften besitzt (kleiner Einfangsquerschnitt für Neutronen; die γ -Strahlung als Folge der Aktivierung ist gering).

Der Schutz vor der Neutronen- und γ -Strahlung muß durch eine äußere Abschirmung gewährleistet sein.

Schnelle Neutronen werden durch Stöße mit leichten Atomkernen stark abgebremst. Sehr gut eignen sich Wasser, Paraffin und Polyäthylen, da diese Materialien einen hohen Anteil an Wasserstoff aufweisen und außerdem leicht zu bearbeiten sind. Dabei entsteht allerdings als Folge der Reaktion $H-1(n,\gamma)H-2$ eine durchdringende γ -Strahlung mit einer Energie von 2,2 MeV; bei Paraffin und Polyäthylen werden außerdem über $C-12(n,\gamma)C-13$ γ -Quanten mit 4,9 MeV gebildet.

Die langsamen Neutronen können mit Bor und Cadmium eingefangen werden; beide Elemente besitzen große Einfangsquerschnitte für Neutronen dieser Energie.

Die primären γ -Quanten, die beim Zerfall der Cf-Kerne emittiert werden, können am besten durch einen Mantel aus Blei oder Eisen absorbiert werden, der direkt um die Kapsel gelegt wird. Die sekundäre γ -Strahlung, die als Folge der Kernreaktionen in der Abschirmung entsteht, muß durch eine äußere Umhüllung abgefangen werden.

4.2.3. Bestrahlungsanlage

Zur Aktivierung von Ca und P nach den in Abschnitt 4.1 angegebenen Reaktionen (verzögerte Messung) sind sowohl thermische als auch schnelle Neutronen notwendig. Die Bestrahlungsanlage wurde so ausgelegt, daß diese Anforderungen erfüllt werden können (s. Abb. 4 und 5).

Die Neutronenquelle besteht aus einem Draht mit einer Länge von 12 cm, der von zwei konzentrischen Röhren aus Zircalloy umgeben ist. Sie enthielt am 1.7.1975 190 μg Cf-252. Mit Hilfe einer Schubstange kann die Quelle in verschiedene Positionen gebracht werden.

Ca. 40% der von Cf-252 emittierten Neutronen haben eine Energie von mehr als 2 MeV und können daher die Kernreaktion mit P durchführen. Um diesen Anteil möglichst weitgehend auszunutzen, muß die Moderation der Neutronen zwischen der Quelle und der Hand gering gehalten werden. Das wird erreicht durch direktes Umfassen der Quelle mit der Hand. Der Abstand zwischen Quelle und Hand wird durch ein dünnwandiges Rohr aus Plexiglas definiert.

Andererseits wird für die Aktivierung von Ca eine ausreichende thermische Flußdichte benötigt. Daher ist der gesamte Raum um die Hand herum mit Moderator material ausgefüllt. Dadurch wird eine hohe Thermalisierung und Rückstreuung der Neutronen sowie eine möglichst homogene Verteilung im Bestrahlungsvolumen erreicht.

Zur Übersicht über die Verteilung der Neutronen im Bestrahlungsraum wurden Berechnungen durchgeführt. In den Abb. 6 bis 8 ist die Ortsabhängigkeit der Neutronenflußdichte für eine Punktquelle und eine Stabquelle in Wasser, das ähnliche Moderator-eigenschaften besitzt wie Polyäthylen, dargestellt. Daraus ist folgendes zu sehen:

- 1) Die Flußdichte der schnellen Neutronen nimmt mit wachsender Entfernung von der Quelle wesentlich schneller ab als die thermische Flußdichte.
- 2) Die Verteilung der schnellen Neutronen wird durch die stabförmige Ausbildung der Quelle entscheidend verändert. Dadurch bleibt die Flußdichte in Richtung der Quellachse über einen genügend großen Bereich nahezu konstant.

Um eindeutig definierte Bestrahlungszeiten zu erhalten, erfolgt die Vorbereitung zur Aktivierung außerhalb der Bestrah-

lungsanlage. Die Hand wird in ein unten geschlossenes Rohr aus Plexiglas eingeführt, justiert und mit Wasser umgeben. Nach dem Einsetzen des Rohrs wird die Quelle in Bestrahlposition gefahren.

Die Größe der Bestrahlungsanlage muß nach der 1. Strahlenschutzverordnung so bemessen sein, daß die Gesamtdosisrate an der Oberfläche maximal 2,5 mrem/h beträgt /44/. Andererseits soll die Anlage zugleich Lager- und Transportbehälter für die Neutronenquelle sein. Daher besteht die Gesamtanlage aus zwei Teilen, einem fahrbaren Transportwagen, der die Quelle und den Moderator aus Polyäthylen enthält, und einer stationären Abschirmung. An der Vorderseite ist die Abschirmung nicht ausreichend, da die Länge des Armes das bestimmende Maß ist; die fahrbare Abschirmwand gleicht diesen Mangel aus. Die Abschirmung der Neutronen erfolgt mit Paraffin, dem 2,5 Gew.-% Bor zugesetzt ist. Die γ -Strahlung wird an verschiedenen Stellen absorbiert, zunächst durch ein Pb-Rohr, das in der Lagerstellung die Quelle umhüllt, dann durch einen Pb-Mantel, der den Moderator umgibt, und schließlich durch die Außenwände des Wagens und der Burg, die aus Eisen gefertigt sind.

Die skizzierte Bestrahlungsanlage kann bis zu 250 μg Cf-252 aufnehmen.

4.3. Messung

Zur Messung der verzögerten γ -Strahlung sind Szintillations-Detektoren wegen ihrer höheren Ansprechwahrscheinlichkeit besser geeignet als Halbleiter-Detektoren. Die Frage des Auflösungsvermögens spielt beim vorliegenden Problem nicht die entscheidende Rolle, da nur wenige Radionuklide mit nennenswerten Aktivitäten auftreten. Um eine genügend hohe Impulsausbeute zu erreichen, wird die Hand zwischen zwei großflächige NaJ(Tl)-Detektoren mit den Abmessungen 5"Ø x 4" gehalten (s. Abb. 9).

Die in den Detektoren erzeugten elektrischen Impulse werden

verstärkt und einem Vielkanalanalysator zugeführt, der die Energieverteilung der γ -Quanten anzeigt. Abb. 10 zeigt die gesamte Meß- und Auswerteapparatur; das Schema der elektronischen Meßkette ist in Abb. 11 aufgezeichnet.

Die verwendeten Geräte (insbesondere die Photomultiplier der Detektoren) weisen eine Drift auf, die von Temperatur- und Spannungsschwankungen sowie anderen zum Teil unbekanntem Ursachen herrührt. Da diese Drift in den beiden Detektoren in unterschiedlicher Stärke und unabhängig voneinander auftritt, kann es bei der Messung zu Verbreiterungen der Peaks bzw. zu scheinbaren "Doppelpeaks" kommen. Das erschwert eine sinnvolle Auswertung und macht sie teilweise unmöglich. Daher werden die Impulse vor ihrer Summierung durch Vergleich mit den Impulsen eines Referenzpeaks stabilisiert. Dazu wurde Mn-54 mit dem Peak bei 835 keV verwendet.

Bei bestmöglichem Abgleich der beiden Detektor-Teilsysteme ist das Auflösungsvermögen des Gesamtsystems zu 7,8% bestimmt worden (mit Cs-137 bei 662 keV).

4.4. Auswertung der γ -Spektren

Die Zahl der registrierten Impulse unter dem Photopeak ist ein Maß für die Masse des gesuchten Elements. Enthält das Spektrum mehrere Peaks, dann setzt sich die Zahl der Impulse, die in einem bestimmten Kanal des Spektrums erscheinen, aus mehreren Komponenten zusammen (vgl. Abschn. 3.2.3). Das Ziel der Auswertung ist es daher, die Impulse, die zum Photopeak des gesuchten Radionuklids beitragen, von den übrigen Impulsen zu trennen. Aus der Vielzahl der bekannten Auswerteverfahren /45,46/ sind einige ausgewählt und angewandt worden.

Zur Messung und Auswertung der Spektren stand ein System der Fa. Canberra Industries zur Verfügung, bestehend aus einem Vielkanalanalysator, einem Magnetbandkassettengerät zur Speicherung von Programmen und Daten sowie einem Kleincomputer (PDP 11/05). Die dafür erstellten Programme ermöglichen einen

Transfer der Daten innerhalb dieses Systems und ihre Verarbeitung⁺⁾ . Das Prinzip der Auswertung ist in Abb. 12 dargestellt.

Bei den geringen Zählraten, wie sie im vorliegenden Fall auftreten, sind die statistischen Schwankungen deutlich zu erkennen. Da sie die Auswertung erschweren, ist es im allgemeinen notwendig, eine Glättung der Rohdaten vorzunehmen. Dem Programm liegt eine kubische Glättung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate zugrunde, wobei eine unterschiedliche Anzahl von Punkten zur Berechnung der geglätteten Werte herangezogen werden kann; im allgemeinen wurden 21 Punkte verwendet.

Der Untergrund kann auf verschiedene Weise berücksichtigt werden.

- Die einfachste Methode ist es, vor jeder Messung den Null-effekt zu bestimmen und ihn vom gemessenen Spektrum abziehen. Die Fläche unter dem auszuwertenden Peak kann dann als Integral der Impulse innerhalb bestimmter Grenzen leicht berechnet werden. Dieses Verfahren ist vor allem beim Peak mit der höchsten Energie anzuwenden, da in diesem Fall Störungen durch die Escape-Peaks und den Comptonuntergrund anderer Linien nicht auftreten.
- Im allgemeinen wird der Untergrund durch eine Gerade angenähert. Von der gesamten Peakfläche wird dann eine Trapez-fläche abgezogen. Die Gerade wird durch je einen Punkt links und rechts vom Peak definiert, wobei diese Grenzen in der Regel subjektiv von der auswertenden Person gewählt werden.
- Der Untergrund kann auch durch eine Stufen-Funktion

$$y = a (x-x_0)^{1/n} \quad (19)$$

angenähert werden, wobei x_0 das Zentrum des Peaks und n eine

+) Programmsprache CLASS (starke Ähnlichkeit mit BASIC);
entwickelt von der Fa. Canberra Industries.

Die Programme sind beim Lehrstuhl für Chemische Verfahrenstechnik der Universität Stuttgart sowie im Laboratorium für Isotopentechnik der GfK Karlsruhe hinterlegt.

ungerade Zahl ≥ 3 ist /47/. Die Approximation erfolgt mit Hilfe einiger Punkte links und rechts vom Peak. Mit dieser Funktion wird berücksichtigt, daß der Fuß eines Peaks links höher steht als rechts.

Ein vom Untergrund befreiter Peak kann näherungsweise (vor allem im hochenergetischen Teil) durch eine Gauß-Funktion

$$y = b \exp\left(-\frac{(x-x_0)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (20)$$

approximiert werden mit x_0 als Peakzentrum. Da die Fläche unter einer Gaußkurve leicht aus den Parametern der Funktion berechnet werden kann ($F = 2,51 \cdot b \cdot \sigma$), führt eine Anpassung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate zur gewünschten Peakfläche.

Um zu Aussagen über die Güte und Brauchbarkeit der beschriebenen Methoden zu gelangen, wurden sie zur Auswertung aller anfallenden Spektren angewandt. Auf Grund der gewonnenen Erfahrungen läßt sich folgendes feststellen:

- 1) Bei Spektren, die von nur einem Radionuklid herrühren, liefert die Integralmethode die niedrigsten Standardabweichungen. Eine Glättung ist dabei nicht erforderlich. Zur Auswertung von Photopeaks, die keine Einflüsse von anderen Peaks enthalten (z.B. der Peak mit der höchsten Energie), ist diese einfache Methode daher gut geeignet.
- 2) Bei der Trapezmethode ist eine Glättung unumgänglich. Die Standardabweichungen liegen hier etwas höher als bei der Stufenmethode.
- 3) Die Anwendung eines Gaußfits bringt im allgemeinen keine Verbesserung der Resultate.

Es war nicht Aufgabe der vorliegenden Arbeit, optimale Auswerteverfahren zu entwickeln und dafür Rechenprogramme zu schreiben. Daher können an den erstellten Programmen noch Verbesserungen und Ergänzungen vorgenommen werden, die vor allem im Hinblick auf eine Routineanwendung günstig sind. So ent-

halten die Unterprogramme zur Stufen-Methode noch subjektive Elemente bei der Wahl der Grenzen; außerdem ist eine Auswertung von Mehrfachpeaks mit dem Gaußprogramm noch nicht möglich.

4.5. Störreaktionen

Der menschliche Körper enthält nahezu alle chemischen Elemente. Davon kommen zwölf in größeren Konzentrationen vor. In Tab. 3 sind diese Elemente aufgeführt; die Gewichtsangaben beziehen sich auf den Standardmenschen mit 70 kg Körpergewicht /48/. Alle übrigen Elemente treten nur in Spuren auf und sind für diese Betrachtung unwesentlich.

Von den 12 Hauptelementen wurden die (n,γ) -, (n,p) -, (n,α) - und $(n,2n)$ -Reaktionen aller stabilen Isotope anhand ihrer Daten /38,39/ auf eine mögliche Störung untersucht (vgl. Abschn. 3.3). Dabei wurden folgende Kriterien zur Beurteilung herangezogen:

- 1) Es interessieren nur Reaktionen, die zu γ -strahlenden Nukliden führen.
- 2) Zur P- und Ca-Analyse werden die Linien bei 1,78 MeV und 3,1 MeV ausgewertet. Daher können zunächst alle Radionuklide stören, deren emittierte γ -Quanten im Energiebereich von etwa 1,5 bis 4,3 MeV liegen; die obere Grenze dieses Bereichs ergibt sich aus der Berücksichtigung der Double-escape-Linien von hochenergetischen Peaks. Alle Reaktionen, die zu γ -Quanten geringerer oder höherer Energie führen, stören nicht.
- 3) Eine Reaktion ist irrelevant, wenn das Produkt aus Isotopenhäufigkeit, Wirkungsquerschnitt und Wahrscheinlichkeit der γ -Linie wesentlich kleiner ist als bei den Reaktionen für Ca und P.
- 4) Ist die Halbwertszeit der entstehenden Radionuklide in der Größenordnung von einigen Sekunden oder kleiner, so stört die Reaktion nicht, da die Aktivität bis zum Beginn der Messung nach etwa einer Minute bereits abgeklungen ist.

Liegt die Halbwertszeit im Bereich von Monaten oder darüber, so kann sich bei einer Bestrahlungszeit von wenigen Minuten keine störende Aktivität aufbauen.

Nach dieser Prüfung bleiben einige Reaktionen der Elemente S, K, Na, Cl und Mg, deren Störeinfluß durch eine theoretische Betrachtung allein nicht ausgeschlossen werden kann. Sie sind in Tab. 3 aufgeführt. Diese Fälle müssen experimentell untersucht werden.

5. Experimente und Ergebnisse

Die nachfolgend beschriebenen Experimente dienten dazu, das oben dargelegte Konzept des Verfahrens zu realisieren und auf seine Brauchbarkeit hin zu prüfen. Insbesondere wurde untersucht:

- die Eignung von Cf-252 als Neutronenquelle;
- die gleichzeitige Messung von Ca und P;
- der Einfluß verschiedener Parameter auf das Meßergebnis und ihre Optimierung.

5.1. Versuchsobjekte

Für die Experimente wurden sogenannte Phantome verwendet; im vorliegenden Fall waren das Behälter aus Plexiglas, die mit Lösungen bekannter Zusammensetzung und Konzentration gefüllt werden können. Als Modelle dienten ein Hohlzylinder für die geschlossene Hand und ein Quader für die gestreckte Hand. Die verschiedenen Ausführungen sind aus der Tab. 4 und der Abb. 13 ersichtlich. Die Bezeichnungen werden durch die Abb. 14 definiert.

Zur Herstellung der Ca- bzw. P-Lösungen wurde $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ bzw. $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ verwendet. Für einige Versuche zur Meßgeometrie wurde radioaktives Na-24 benutzt, das durch Bestrahlen einer Lösung von NaNO_3 erhalten wurde.

5.2. Flußdichteverteilung der Neutronen

Die Verteilung der Flußdichte in der Umgebung der Neutronenquelle hängt in erster Linie von der Form der Quelle und der Art und Geometrie des sie umgebenden Materials ab, wobei die thermische Flußdichte von Materialien in einer Entfernung bis zu 20 cm beeinflußt wird. Daneben spielt auch die Ausführung der Quelle und ihrer Kapselung eine Rolle. So kann z.B. die Homogenität der Belegung des Trägerdrahtes mit Cf-252 vom Hersteller nur mit einer Toleranz von $\pm 10\%$ garantiert werden.

Mit den Probenbehältern A1, A2 und A3 wurde die Verteilung der Flußdichte experimentell bestimmt. Die geringe Höhe der Behälter ermöglichte es, an 7 Stellen entlang der Stabachse im Abstand von jeweils 1 cm zu messen. Die Zylinder waren dazu mit Ca- bzw. P-Lösung gefüllt (jeweils die gleiche Menge an Ca bzw. P) und wurden im wassergefüllten Einsatz bestrahlt.

Die gemessenen Impulszahlen sind ein Maß für die Aktivierung der Probe und damit für die Neutronenflußdichte im Bereich des Probenvolumens. Die dadurch gewonnenen Verteilungen für thermische und schnelle Neutronen bei 3 Abständen zur Quellachse sind in der Abb. 15 dargestellt. Daraus ist folgendes zu sehen:

- 1) Der Verlauf der experimentellen Kurven entspricht im wesentlichen den berechneten Kurven nach den Abb. 7 und 8. Der Abfall der thermischen Flußdichte zum Rand hin ist etwas flacher als berechnet.
- 2) Das Maximum der Verteilung liegt ca. 5 mm außerhalb des geometrischen Mittelpunkts, vor allem bei den schnellen Neutronen.
- 3) Die Breite der Hand ist etwas größer als der ausgemessene Bereich. Für eine angenommene Breite von 8 cm kann jedoch eine Extrapolation durchgeführt werden. In diesem Bereich betragen die Abweichungen von einem mittleren Wert der thermischen Neutronenflußdichte ca. $\pm 7\%$ für den kleinsten Abstand und nehmen mit wachsendem Abstand auf etwa $\pm 5\%$ ab. Für die schnelle Neutronenflußdichte, die zur Aktivierung von P beiträgt, liegen die Schwankungen bei etwa $\pm 5\%$.

5.3. Aktivierung von Ca und P

Die Aktivierung von Ca- und P-Lösungen ist unter den folgenden Gesichtspunkten vorzunehmen:

- Abhängigkeit der Aktivierung vom Abstand Quellachse - aktivierbares Volumen,
- Abhängigkeit der Aktivierung von der Masse an Ca und P.

Mit Hilfe der Probenbehälter B1, B2 und B3 können beide Abhängigkeiten untersucht werden, da der Abstand des aktivierbaren Volumens mit wachsender Probennummer zunimmt. Dazu wurden die Zylinder mit gleichen Mengen an Ca-Lösung gefüllt und das Restvolumen mit Wasser aufgefüllt, so daß jeweils alle 3 Zylinder die gleiche Masse an Ca enthielten. Es wurden insgesamt 3 verschiedene Probenmengen verwendet, die in Tab. 5 angegeben sind. Die Aktivierung von P wurde in gleicher Weise durchgeführt.

Die Meßergebnisse werden durch zwei zusätzliche Effekte beeinflusst:

1) Ortsabhängigkeit des schnellen Neutronenflusses

Aus der Abb. 8 ist zu ersehen, daß der schnelle Neutronenfluß sehr stark ortsabhängig ist. Da das Probenvolumen eine endliche Dicke von einigen mm besitzt, wird die Lösung unterschiedlich aktiviert, innen stärker und außen weniger stark. Nach der Aktivierung wird die Probe aus dem Bestrahlungseinsatz herausgenommen, abgetrocknet und zum Meßplatz getragen. Außerdem findet in der Lösung eine Diffusion statt. Beide Vorgänge führen zu einer Durchmischung der Lösung und damit zu einer Störung der Aktivitätsverteilung. Da die gemessene Impulsrate vom Ort der Probe im Detektorsystem abhängt (vgl. Abschn. 5.6), bewirkt eine Veränderung der Aktivitätsverteilung eine Änderung des Meßergebnisses.

Um den Einfluß der Bewegung der Proben abzuschätzen, wurde folgendes Experiment durchgeführt: Zwischen Aktivierung und Messung wurde der Probenbehälter unterschiedlich behandelt;

einmal wurde eine Bewegung möglichst vermieden, das andere Mal wurde die Probe gut geschüttelt. Dazu wurde der Zylinder B1 mit P-Lösung verwendet, da die Ortsabhängigkeit der Flußdichte der schnellen Neutronen bei kleinem Abstand zur Quelle am stärksten ist; außerdem ist die Dicke des Probenvolumens bei diesem Zylinder am größten.

Bei je 3 Messungen lag das Meßergebnis für die bewegte Probe um 4% über dem Ergebnis bei der schonenden Behandlung. Obwohl damit der Einfluß des beschriebenen Effekts klein ist, wurden bei der P-Aktivierung die Probenbehälter vor der Messung gut geschüttelt, um gut reproduzierbare Werte zu erzielen.

2) Ortsabhängigkeit der Messung

Der Ort des aktiven Volumens in Bezug auf das Detektorsystem ist bei jedem der 3 Zylinder verschieden. Daher enthalten die Meßergebnisse außer der Ortsabhängigkeit der Aktivierung auch die Ortsabhängigkeit der Messung. Um den Einfluß der Messung gesondert zu bestimmen, wurden die Zylinder mit einer aktiven Na-Lösung gefüllt und ausgemessen; jeder Zylinder enthielt die gleiche Menge an Na-24. Dieses Radionuklid ist gut geeignet, da es leicht herzustellen ist und mit 15 Stunden eine günstige Halbwertszeit besitzt (Messungen sind auch nach einigen Stunden noch möglich). Außerdem überdeckt es mit den beiden Peaks bei 1,37 MeV und 2,75 MeV etwa den Energiebereich, der für die Messung von Ca-49 und Al-28 interessant ist.

Nach diesen Messungen bewirkt der genannte Effekt eine Erhöhung der Zählrate bei den Probenbehältern B2 bzw. B3 um den Faktor 1,02 bzw. 1,04 bezogen auf B1 (bei beiden Peaks). Die Meßergebnisse bei der Ca- und P-Aktivierung sind daher durch diese Faktoren zu dividieren, um die Ortsabhängigkeit der Aktivierung gesondert betrachten zu können.

In der Tab. 6 sind die Ergebnisse für Ca zusammengestellt. Angegeben ist die spezifische Aktivität am Ende der Bestrahlung,

wie sie aus den gemessenen Impulszahlen berechnet werden kann, als Mittelwert von je 3 Messungen; der oben beschriebene Einfluß der Meßgeometrie ist korrigiert. Die Tab. 7 enthält die analogen Werte für P.

Die Auswertung der Daten ergibt folgendes Bild:

- 1) Der Abfall der Aktivierung mit wachsendem Abstand der Probe von der Quelle ist deutlich zu erkennen. Bei P ist dieser Abfall wesentlich stärker, da der schnelle Neutronenfluß rascher abnimmt als der thermische Fluß.
- 2) Der Abfall der Aktivität mit wachsender Masse an Ca bzw. P ist auf die Selbstabsorption der Neutronen- und Gammastrahlung in der Probe zurückzuführen. Bei Verdopplung der Probenmenge geht die Aktivität bei Ca um etwa 3% und bei P um etwa 6% zurück.

5.4. Dosis

Eine wesentliche Frage bei der In-vivo-Aktivierung betrifft die Strahlenbelastung der Patienten. Es gibt bis heute keine verbindlichen Vorschriften über höchstzulässige Dosiswerte bei der medizinischen Anwendung von radioaktiver Strahlung. Für die Anwendung im diagnostischen Bereich kann die 1. Strahlenschutzverordnung mit den Grenzwerten für beruflich strahlenexponierte Personen Anhaltspunkte liefern. Danach beträgt die maximal zulässige Dosis für eine Ganzkörperbestrahlung 5 rem pro Jahr, für die Bestrahlung der Hand 60 rem pro Jahr /44/.

Bei der Beurteilung der auftretenden Strahlung in Bezug auf die Belastung des Körpers sind 3 Fälle zu unterscheiden.

1) Erzeugte Aktivität in der Hand

Infolge der Aktivierung werden in der Hand Radionuklide erzeugt, die unter Emission von Strahlung zerfallen. Ihre Aktivität ist sehr gering. Legt man die aktivierten Proben oder die aktivierte Hand auf ein Meßgerät, das zur Kontaminationskontrolle des Personals dient, so wird keine er-

höhe Aktivität festgestellt.

2) Belastung des Körpers durch Strahlung außerhalb der Abschirmung

Die Abschirmung an der Vorderseite der Bestrahlungsanlage ist nicht optimal, da wegen der begrenzten Armlänge die Entfernung Quelle - Vorderwand nicht beliebig groß sein kann. Die Messung der Dosisrate unmittelbar an der Öffnung der vorderen Wand ergab einen Wert von 50 mrem/h während der Vorbereitung und 100 mrem/h während der Bestrahlung. Bei jeweils 2 min Vorbereitungs- und Bestrahlungszeit beträgt die Körperbelastung des Patienten etwa 5 mrem.

3) Belastung der Hand durch direkte Einwirkung der Strahlung

Die Belastung der bestrahlten Hand wurde anhand einer Näherungsformel abgeschätzt und an Modellen gemessen.

Theoretische Abschätzung

Die Dosisrate \dot{D} einer nicht abgeschirmten Punktquelle im Abstand r kann berechnet werden nach der Gleichung

$$\dot{D} = C \frac{Q_n}{4 \pi r^2} \quad (21)$$

Die Konstante C hat für Cf-252 folgende Werte /41/:

Neutronendosis	$1,22 \cdot 10^{-1}$	mrem h ⁻¹ cm ² s
Gammadosis	$8,58 \cdot 10^{-3}$	mrem h ⁻¹ cm ² s
Gesamtdosis	$1,31 \cdot 10^{-1}$	mrem h ⁻¹ cm ² s

(jeweils in Luft)

Q_n ist die Neutronenquellstärke.

Diese Gleichung kann näherungsweise auf das gewählte Handmodell angewandt werden. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Neutronenflußdichte in der Umgebung einer Stabquelle kleiner ist als bei einer Punktquelle gleicher Quellstärke (vgl. Abb. 6 bis 8).

In der Tab. 8 sind einige nach Gl. 21 berechnete Werte der Dosisrate bei verschiedenen Abständen zur Quelle aufgeführt. Die so geschätzten Werte liegen im allgemeinen zu hoch, da in Wirklichkeit zwischen Quelle und Bestrahlort noch eine Absorption der Strahlung durch verschiedene Materialien auftritt.

Messungen

Für Messungen der Neutronendosis werden geeignete Materialien der Neutronenstrahlung ausgesetzt. Aus der anschließend gemessenen Aktivität wird die Flußdichte der Neutronen berechnet und mit Hilfe von Umrechnungsfaktoren daraus die Dosis ermittelt. Thorium wird von Neutronen mit einer Mindestenergie von 1,2 MeV zu Kernspaltungen angeregt. Befindet sich eine Kunststoffolie (Makrofol E) in engem Kontakt mit einer Folie aus Th, so erzeugen die Spaltprodukte des aktivierten Th in der Folie kleine Löcher, die mit geeigneten Verfahren sichtbar gemacht werden können. Die Zahl der entstehenden Löcher ist proportional zur Flußdichte der Neutronen oberhalb 1,2 MeV.

Messungen an Cf-Quellen ergaben /49/, daß es zur Bestimmung der Gesamtdosis der Neutronen genügt, die Dosis der Neutronen oberhalb 1,2 MeV zu messen. Durch Multiplikation dieses Wertes mit dem Faktor 1,9 erhält man die Gesamtdosis. Dabei tragen die Neutronen unterhalb 0,7 MeV mit maximal 10% zur Gesamtdosis bei.

In einer stark moderierenden Umgebung, wo die thermische Flußdichte relativ hoch ist (das ist in der beschriebenen Bestrahlungsanlage der Fall), werden mit dieser Methode zu große Dosiswerte gemessen, da Th im thermischen Bereich Resonanzen aufweist. Außer Th-Folien wurden daher zur Kontrolle noch andere Dosimeter benutzt. Mit der Aktivierung von S-Tabletten wurde der Dosisanteil oberhalb 2,5 MeV gemessen, mit Au-Folien die thermischen und epithermischen Anteile.

Die Dosis der emittierten γ -Quanten muß gesondert bestimmt werden. Dazu wurden Thermoluminiszenz-Dosimeter verwendet.

Die verschiedenen Dosimeter wurden an den Abstandshaltern befestigt und unter den gleichen Bedingungen bestrahlt wie die Zylinder. Das Ergebnis ist in der Abb. 16 dargestellt. Daraus ist deutlich zu erkennen, daß der überwiegende Teil der Dosis von den schnellen Neutronen herrührt. Die thermischen Neutronen und die γ -Strahlung tragen nur mit insgesamt etwa 6% zur Gesamtdosis bei.

In der Tab. 8 sind einige berechnete und gemessene Werte der Dosisrate zum Vergleich aufgeführt. Abschätzung und Messung stimmen gut überein.

5.5. Optimierung der Bestrahlungsparameter

Bei der Bestrahlung soll eine möglichst hohe Aktivität erzeugt werden, damit eine hohe Zählgenauigkeit erreicht wird. Andererseits muß die Dosis so niedrig wie möglich gehalten werden, um eine unnötige Strahlenbelastung des Patienten zu vermeiden. Zwischen beiden Forderungen ist ein befriedigender Kompromiß zu finden.

Sind die Probenmenge und die Quellstärke der Neutronenquelle vorgegeben, so werden die erzielbare Aktivierung und die applizierte Dosis vom Abstand der Probe zur Quelle und von der Bestrahlungszeit bestimmt. Die Abhängigkeiten von diesen Parametern sind jedoch jeweils verschieden.

Bei der Ca-Aktivierung wird die erzielbare Aktivität von der Flußdichte der thermischen Neutronen bestimmt. Diese nimmt mit wachsendem Abstand von der Quelle ab. Die Dosis dagegen hängt im wesentlichen von der Größe der schnellen Flußdichte ab, die wesentlich rascher abnimmt. Dieses Verhalten ist in der Abb. 17a) graphisch dargestellt. In der Abbildung sind die Aktivierung und die applizierte Dosis in Abhängigkeit vom Abstand zur Quelle bei verschiedenen Bestrahlungszeiten aufgetragen. Die Aktivierungskurven sind wesentlich flacher als

die Dosiskurven. Das führt dazu, daß z.Beisp. beim Übergang von $t_b = 2$ min und $r = 17$ mm zu $t_b = 3$ min und $r = 25$ mm eine Erhöhung der Aktivierung und eine gleichzeitige Verringerung der Dosis eintreten. Es ist also günstig, die Bestrahlung in größerem Abstand von der Quelle durchzuführen und die dadurch verringerte Aktivierung durch eine größere Bestrahlungszeit zu kompensieren.

Bei der P-Aktivierung liegen die Verhältnisse anders, da hier die Aktivierung durch die schnellen Neutronen verursacht wird. Dosis und Aktivierung nehmen in gleichem Maß bei wachsendem Abstand zur Quelle ab, wie aus der Abb. 17b) zu ersehen ist. Die Dosis nimmt proportional zur Bestrahlungszeit zu, während die entsprechende Kurve für die Aktivierung gekrümmt ist (vgl. Abschn. 3.2.2). Daher bewirkt eine Verdopplung der Bestrahlungszeit zwar eine Verdopplung der Dosis, aber keine entsprechende Erhöhung der Aktivierung. Aus der Abb. 17b) geht hervor, daß ein großes Verhältnis von Aktivierung und Dosis bei kurzer Bestrahlungszeit erreicht wird. Die dadurch verringerte Aktivierung kann durch einen erhöhten Neutronenfluß ausgeglichen werden, in diesem Fall durch einen geringeren Abstand zur Quelle. Einer Verkürzung der Bestrahlungszeit und einer Verringerung des Abstands sind jedoch praktische Grenzen gesetzt. Bei Zeiten, die unter einer Minute liegen, machen sich Meßfehler in der Zeitmessung bemerkbar. Ein Abstandshalter mit einem Radius von 15 mm wird von der Hand ganz umfaßt; wird der Radius verkleinert, dann überlappen sich die Fingerspitzen mit dem Handballen, was für die Aktivierung ungünstig ist.

Nach der Tab. 8 beträgt die Dosisrate bei 15 mm Abstand 10 rem pro min. Bei einer Bestrahlungszeit von 1,5 min ist damit an der Handinnenfläche eine Dosis von 15 rem zu erwarten. Verglichen mit dem erwähnten Grenzwert von 60 rem/Jahr können somit in einem Jahr etwa vier Messungen an einer Hand durchgeführt werden.

Diese Wahl der Parameter ist im wesentlichen den Erfordernissen der P-Aktivierung angepaßt. Das ist jedoch gerechtfertigt, da

die gemessenen Impulszahlen für Ca trotzdem höher bleiben als bei P. Eine Bestrahlungszeit von 1,5 min bei einem Abstand von 15 mm wird daher als günstig angesehen.

Diese optimalen Werte gelten für eine Neutronenquellstärke, die 190 μg Cf-252 entspricht. Wird die Cf-Menge auf 250 μg erhöht, so kann die Bestrahlungszeit auf 1 min gesenkt werden. Die Dosis bleibt dadurch die gleiche, jedoch verbessert sich das Verhältnis von Aktivierung und Dosis.

5.6. Messung der Aktivität

5.6.1. Impulsausbeute des Detektorsystems

Die Zahl der Impulse, die von einer γ -Quanten emittierenden Probe registriert werden, hängt außer von der Art und Anzahl der Detektoren von deren räumlicher Anordnung und vom Ort der Probe im Detektorsystem ab. Um einen Überblick über die Verhältnisse im vorliegenden Detektorsystem zu gewinnen, wurde der Raum zwischen den beiden Detektoren mit einem punktförmigen Strahler ausgemessen. Dazu wurde Y-88 verwendet, das als Standardpräparat bei der IAEA in Wien zu erhalten ist. Die γ -Quanten von Y-88 haben Energien von 0,898 MeV und 1,84 MeV. Die aktive Substanz ist in einem Metall-Scheibchen mit einem Durchmesser von 25 mm eingeschlossen. Abb.18 zeigt die Aufhängung der Probe und die Definition der Geometrie. Die zwei Stative, an denen die Probe bifilar aufgehängt war, hatten Bohrungen im Abstand von 1 cm. Durch Versetzen der Stifte, an denen die Fäden befestigt waren, konnte die Probe schrittweise in z-Richtung verschoben werden (von der Achse der Detektoren zum Rand hin). Diese Messungen wurden für mehrere Punkte in x-Richtung durchgeführt. Außerdem wurde der Abstand d der Detektoren verändert.

Die Ergebnisse sind in den Abb. 19 und 20 für die Energie von 1,84 MeV zusammengefaßt. Daraus ist folgendes zu ersehen:

- 1) Mit wachsendem Detektorabstand nimmt die Ausbeute ab.
- 2) Wenn der Detektorabstand genügend groß ist, ändert sich die

Zählrate nur wenig mit x . Bei Annäherung an die Detektoroberfläche ist ein rascher Anstieg zu beobachten (Abb. 19b).

- 3) Die Impulsausbeute ist in der Achse der Detektoren am höchsten und fällt zum Rand hin ab (Abb. 20). Dieser Abfall ist nahezu unabhängig von x (Abb. 19).
- 4) Der Abfall zum Rand hin ist bei größerem Detektorabstand weniger stark ausgeprägt (Abb. 20).

5.6.2. Vergleich Zylindergeometrie - Quadergeometrie

Zur Messung der aktivierten Hand sind zwei Möglichkeiten denkbar:

- die Hand wird zur Faust geschlossen,
- die Hand wird gestreckt.

Die Frage, welche dieser Anordnungen günstiger ist, wurde theoretisch und experimentell untersucht.

Abschätzung

Ausgehend von den Ergebnissen mit Punktquellen kann die Impulsausbeute eines räumlich ausgedehnten Objekts abgeschätzt werden. Das Objekt wird dazu in kleine Teilvolumina V_i aufgeteilt und diese mit dem entsprechenden Wert Z_i aus der Punktquellenmessung multipliziert. Nach der Formel

$$\bar{Z} = \frac{\sum_i Z_i \cdot V_i}{\sum_i V_i} \quad (22)$$

erhält man einen Wert \bar{Z} , der der zu erwartenden Impulsrate des Objekts proportional ist. Der Proportionalitätsfaktor hängt von der Dichte des Meßnetzes bei der Punktquellenmessung bzw. von der Größe der verwendeten Teilvolumina ab.

Auf diese Weise können Objekte verschiedener Geometrie hinsichtlich ihrer zu erwartenden Impulsausbeute verglichen werden. Im vorliegenden konkreten Fall liegt die geschätzte Ausbeute bei Hohlzylindern um ca. 8% höher als bei Quadern.

Messung

Der Hohlzylinder B2 und der entsprechende Quader Q1 wurden mit jeweils der gleichen Menge einer aktiven Na-Lösung gefüllt und ausgemessen. Dabei wurden verschiedene Abstände zwischen den Detektoren eingestellt. Das Ergebnis ist in Tab.9 dargestellt. Danach liegen die Zählraten beim Hohlzylinder für jeden Detektorabstand um ca. 10% höher als beim Quader. Der relative Abfall der Zählraten mit wachsendem Abstand ist bei beiden Modellen gleich.

5.7. Optimierung der Meßparameter

5.7.1. Meßgeometrie

Die Meßgeometrie muß nach folgenden Gesichtspunkten erstellt werden:

- Die Zahl der gemessenen Impulse soll so hoch wie möglich sein.
- Die Impulsausbeute soll in jedem Teilbereich der Probe möglichst gleich sein.
- Die Positionierung der Probe muß reproduzierbar sein.

Gute Werte in Bezug auf die Ausbeute und die Homogenität der Messung sind nach den Ergebnissen des Abschnitts 5.6.1 nicht gleichzeitig zu erreichen. Daher muß ein Kompromiß eingegangen werden. Wenn eine gute Fixierung der Probe erreicht wird, die auch eine gute Reproduzierung der Position ermöglicht, dann kann die Forderung nach hoher Ausbeute vorrangig angesehen werden. Das heißt, der Abstand der Detektoren ist möglichst klein zu halten.

Die geschlossene Hand erfordert einen Detektorabstand von mindestens 10 cm, während bei der gestreckten Hand höchstens 6 cm erforderlich sind. Nach Tab. 9 ist bei der gestreckten Hand damit eine um etwa 20% höhere Ausbeute zu erwarten; daher ist diese Anordnung vorzuziehen.

Als Alternative kann die Zahl der Detektoren auf drei erhöht werden. In diesem Fall muß die Hand zur Messung jedoch geschlossen werden. Wegen der Größe der Detektoren ist der Abstand auf mindestens 12 cm zu vergrößern. Rechnet man mit einer maximalen Steigerung der Ausbeute um 50% durch die Verwendung des dritten Detektors, so kommt man nach der Tab. 9 auf einen relativen Wert von etwa maximal 100. Im Vergleich dazu steht der Wert von 90 bei der gestreckten Hand zwischen 2 Detektoren.

Der Unterschied in der Ausbeute der beiden Anordnungen ist nicht so gravierend, als daß er die höheren Kosten und die aufwendigere elektronische Meßapparatur, die mit einem dritten Detektor verbunden sind, rechtfertigen könnte. Eine Verbesserung kann lediglich durch die Verwendung von Detektoren mit einem größeren Durchmesser erreicht werden.

5.7.2. Meßzeit

Die Halbwertszeiten von Ca-49 und Al-28 sind zu verschieden, als daß eine gemeinsame Meßzeit günstig wäre (vgl. Abschn. 3.2.3). Für Al-28 mit $T = 2,3$ min reichen 5 min aus; durch eine längere Messung wird das Verhältnis von Peakinhalt und Untergrund kleiner, wobei der Peakinhalt selbst kaum noch ansteigt. Für Ca-49 mit $T = 8,7$ min sollte 15 min lang gemessen werden.

In der Praxis können beide Messungen gleichzeitig durchgeführt werden. Zunächst werden die Impulse 5 min lang in einen bestimmten Speicher des Vielkanalanalysators eingezählt. Dann wird auf einen zweiten Speicher umgeschaltet und für weitere 10 min gemessen. Für die Ca-Auswertung werden die Peaks bei 3,1 MeV in den beiden Speichern addiert.

5.8. Störreaktionen

Nach den Überlegungen des Abschnitts 4.5 gibt es einige Elemente, die Störungen verursachen können (S, K, Na, Cl, Mg; vgl. Tab. 3). Zur Klärung dieses Problems wurden Lösungen einfacher Verbindungen dieser Elemente hergestellt und im Zylinder B1

aktiviert. Zum Vergleich dienten Messungen mit Ca- bzw. P-Lösungen, die unter gleichen Bedingungen durchgeführt wurden.

Die untersuchten Elemente treten im Körper in deutlich geringeren Mengen als Ca und P auf. Trotzdem wurden bei diesen Messungen annähernd gleiche Konzentrationen verwendet, um die Störungen besser zu erkennen. Bei der Beurteilung einer Störung kann näherungsweise davon ausgegangen werden, daß in der Hand die gleichen Gewichtsverhältnisse dieser Elemente vorliegen wie im gesamten Körper.

Die Bestrahlungszeit betrug jeweils 5 min, um eine genügend hohe Aktivität zu erzielen. Die Ergebnisse wurden anschließend umgerechnet auf eine Bestrahlungszeit von 1,5 min, wie sie für In-vivo-Messungen vorgesehen ist. Die Meßzeit betrug jeweils 5 min und 15 min (analog zur P- bzw. Ca-Messung). Die gemessenen Spektren sind in den Abb. 21 bis 27 dargestellt.

Schwefel

Die Reaktion $^{34}\text{S}(n,p)^{34}\text{P}$ ist trotz der kurzen Halbwertszeit von P-34 mit 12,4 s durch einen Peak bei 2,14 MeV zu erkennen. Der Single-escape-Peak dazu bei 1,63 MeV liefert einen Anteil zum Peak von Al-28 von maximal 0,5%.

Die Reaktion $^{36}\text{S}(n,\gamma)^{37}\text{S}$ führt zu γ -Quanten mit der Energie 3,1 MeV; sie tragen zu etwa 1% zum Peak von Ca-49 bei.
(vgl. Abb. 23)

Kalium

Die Reaktion $^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$ dominiert; der Peak bei 1,52 MeV stört jedoch nicht. Der Peak bei 2,17 MeV, der von den Reaktionen $^{39}\text{K}(n,2n)^{38}\text{K}$ und $^{41}\text{K}(n,\alpha)^{38}\text{Cl}$ herrühren kann, ist sehr klein und erhöht lediglich durch seinen Comptonanteil den Untergrund unter dem Peak von Al-28.
(vgl. Abb. 24)

Natrium

Die (n,γ) -Reaktion, die zu Na-24 führt, ist deutlich zu erkennen; die beiden Peaks bei 1,37 MeV und 2,75 MeV stören jedoch nicht. Die (n,α) -Reaktion, mit der F-20 gebildet wird, liefert einen kleinen Peak bei 1,63 MeV; daneben bei 1,73 MeV ist der Double-escape-Peak von 2,75 MeV zu sehen. Beide tragen insgesamt mit etwa 1% zum Peak von Al-28 bei.

(vgl. Abb. 25)

Chlor

Die Reaktion $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$ führt zu einem Peak bei 1,64 MeV, der sich teilweise dem Peak von Al-28 überlagert. Der Anteil des Cl-Peaks beträgt etwa 5%.

Die (n,p) -Reaktion von Cl-37, über die S-37 mit γ -Quanten bei 3,1 MeV gebildet wird, trägt mit maximal 0,5% zum Peak von Ca-49 bei.

(vgl. Abb. 26)

Magnesium

Magnesium verursacht keine störenden Einflüsse (vgl. Abb. 27).

Zusammenfassend läßt sich folgendes festhalten:

- 1) Peaks bei einer Energie von etwa 1,65 MeV, hervorgerufen durch S, K, Na und Cl, tragen mit etwa 7% zum Peak von Al-28 bei; davon trägt Cl den Hauptanteil. Da die Peaks nicht vollständig zusammenfallen, kann durch eine entsprechende Auswertung der Störanteil eliminiert werden.
- 2) Der Untergrund unter dem Peak von Al-28 ist durch den Comptonanteil höherenergetischer Peaks höher als bei Ca-49. Dadurch erhöht sich der statistische Fehler der P-Messung.
- 3) Der Peak von Ca-49 enthält einen Anteil von etwa 1,5% durch S und Cl.

5.9. Reproduzierbarkeit

Um die Genauigkeit des Verfahrens zu bestimmen, wurde eine Probe insgesamt 10 Mal unter gleichen Versuchsbedingungen aktiviert und ausgemessen. Dazu wurde der Zylinder B2 und ein Gemisch der Ca- und P-Lösungen mit 4,6 g Ca und 2,1 g P verwendet. Die Ausfällung von Kalziumphosphat wurde durch Zugabe von HNO_3 verhindert.

Der Variationskoeffizient der Mittelwerte betrug bei diesen Messungen für Ca 4,0% und für P 4,3%. Die von der Zählstatistik her erwarteten Werte liegen bei ca. 2,5% für Ca und 3,5% für P.

Die gemessene Standardabweichung ist nur wenig höher als die erwartete. Das bedeutet, daß unbekannte Störeinflüsse nur eine geringe Rolle spielen. Zwei Ursachen können genannt werden, die zu einer Streuung der Meßwerte führen können:

- 1) Die Messung der Bestrahlungs- und Wartezeit erfolgte von Hand mit einer Stoppuhr. Bei 5 min Bestrahlung und 1 min Wartezeit sowie einem maximalen Fehler von jeweils 1 s beträgt der relative Fehler in der Zählrate 0,2% bei Ca und 0,6% bei P.
- 2) Die Stabilisierung der Elektronik mit dem Referenzpeak von Mn-54 bei 0,84 MeV ist für die Messung von Ca-49 mit $E_\gamma = 3,1$ MeV nicht optimal, da die Energien zu weit auseinander liegen. Dadurch kann es beim Ca-Peak zu einer leichten Verbreiterung und Verformung infolge der Drift der Elektronik kommen. Die Folge davon ist eine größere Streuung der Meßergebnisse.

5.10. In-vivo-Experimente

Nachdem die optimalen Bestrahlungs- und Meßbedingungen gefunden waren, wurden zum Abschluß der Arbeiten an drei Personen⁺⁾ In-vivo-Messungen durchgeführt. Dabei wurden zwei verschiedene

+) Ich danke den Herren Dr. Braun und Dr. Vogg für die Bereitschaft zu dem In-vivo-Versuch.

Meßgeometrien verwendet. Die rechte Hand war bei der Messung zur Faust geschlossen; dabei betrug der Abstand der Detektoren 11 cm. Die linke Hand wurde gestreckt ausgemessen bei einem Detektorabstand von 3,1 cm.

Die Ergebnisse sind in Tab. 10 dargestellt; Abb. 28 zeigt die Spektren einer aktivierten Hand nach Glättung der Rohdaten. Die beiden Peaks von Ca-49 und Al-28 sind deutlich zu erkennen. Neben diesen Radionukliden treten noch Na-24 und Cl-38 mit ihren Peaks auf.

Die bei den Versuchen benutzte Messanlage ist für Phantommessungen ausgelegt und für In-vivo-Messungen nicht günstig, da die Bleiabschirmung der Detektoren bei der Messung der Hand nicht vollständig geschlossen werden kann. Daher ist der gemessene Untergrund relativ hoch. Das Verhältnis von Peakinhalt und Untergrund betrug für Ca ca. 1,8 und für P ca. 0,7. Durch einen entsprechenden Umbau der Meßanlage kann der Untergrund wesentlich reduziert werden.

Die wenigen Messungen erlauben folgende Aussagen:

- 1) Die Ergebnisse sind für alle drei Personen verschieden. Das kann von einem unterschiedlichen Mineralgehalt und von der unterschiedlichen Größe und Form der Hände herrühren.
- 2) Die Veränderung der Meßgeometrie macht sich in einem deutlichen Anstieg der Impulsrate bemerkbar. Der Anstieg ist höher als nach den Überlegungen des Abschnitts 5.7 zu erwarten ist. Im wesentlichen ist das darauf zurückzuführen, daß die gestreckte Hand die Detektoren berührt hat, da bei Annäherung an die Detektoroberfläche die Impulsausbeute rasch ansteigt.
- 3) Die Veränderung der Meßgeometrie wirkt sich bei Ca stärker aus als bei P.
- 4) Der statistische Fehler, wie er sich aus der gemessenen Impulszahl und dem ungünstigen Untergrund ergibt, beträgt bei der Messung mit der gestreckten Hand etwa 3% bei Ca und etwa 6% bei P. Beim Ca/P-Wert addieren sich die beiden Fehler.

6. Zusammenfassung

Die Messung des Mineralgehalts im Knochen hat eine große medizinische Bedeutung. Als Weiterentwicklung bereits bestehender Verfahren wird in der vorliegenden Arbeit eine Möglichkeit beschrieben, die Gehalte an Kalzium und Phosphor in den Knochen der Hand in vivo zu bestimmen. Damit können die beiden Hauptkomponenten des Knochens getrennt gemessen und ihre zeitlichen Änderungen erfaßt werden. Das Verfahren basiert auf der Methode der Neutronenaktivierungsanalyse; als Neutronenquelle wird Cf-252 verwendet, das in einer stabförmigen Kapsel untergebracht ist. Dieses Isotop weist gegenüber den bisher üblichen Neutronenquellen einige wirtschaftliche und praktische Vorteile auf, die für seinen Einsatz in der Klinik günstig sind. Die Aktivierung erfolgt in einer eigens dafür konstruierten Bestrahlungsanlage, in der die thermischen und schnellen Anteile der Neutronen optimal genutzt werden. Die in der Hand erzeugte Aktivität wird mit NaJ(Tl)-Detektoren gemessen.

Anhand von einfachen Phantomen wurden die Grundlagen des Verfahrens studiert und die wesentlichen Bestrahlungs- und Meßparameter optimiert. Danach ist bei einer Bestrahlungszeit von 1,5 min und einem Abstand Quelle - Hand von 15 mm eine Dosis von 15 rem an der Innenfläche der Hand zu erwarten (bei 190 µg Cf-252).

Mit dem Verfahren können Verlaufsmessungen zur regelmäßigen Kontrolle der Gehalte an Ca und P durchgeführt werden, wobei eine Hand bis zu viermal im Jahr aktiviert werden kann. Dabei ist eine Genauigkeit der Einzelmessung von ca. 3% bei Ca und ca. 6% bei P zu erreichen.

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse ist zu erwarten, daß die beschriebene Neutronenaktivierungsanalyse mit Cf-252 einen positiven Beitrag zur Lösung der medizinischen Probleme in Bezug auf den Mineralgehalt des Knochens leisten kann. In der klinischen Erprobung und beim Vergleich mit anderen Methoden wird sich zeigen, inwieweit dieses Verfahren die bereits bestehenden ergänzen oder ersetzen kann.

Ordnungszahl	98
Atomgewicht	252
Halbwertszeit:	
α -Emission	2,73 a
spontane Spaltung	85,5 a
effektiv	2,65 a
Anteile des Zerfalls durch	
α -Emission	97 %
spontane Spaltung	3 %
Spezifische Aktivität	530 mCi/mg
Neutronen:	
mittlere Zahl pro Spaltung	3,8
Emissionsrate	$2,34 \cdot 10^9 \text{ mg}^{-1} \text{ s}^{-1}$
mittlere Energie	2,3 MeV
Photonen:	
Emissionsrate	$1,3 \cdot 10^{10} \text{ mg}^{-1} \text{ s}^{-1}$
α -Teilchen:	
Emissionsrate	$1,9 \cdot 10^{10} \text{ mg}^{-1} \text{ s}^{-1}$
Energie	6,11 MeV
Zerfallswärme	39 mW/mg
Anteil durch α -Emission	49 %
Anteil durch spontane Spaltung	51 %

Tab. 1. Physikalische Eigenschaften von Cf-252

Neutronen- Quelle	Halb- werts- zeit Jahre	mittl. Energie MeV	Neutronenausbeute		Volumen für 10^9 n/s cm^3	spez. Wärme- Leistung $\text{W}/10^{10}\text{n}$
			n/s pro Ci	pro g		
$^{241}\text{Am-Be}$	458	4	$2,2 \cdot 10^6$	$7 \cdot 10^6$	2000	150
$^{238}\text{Pu-Be}$	86,4	4,2	$2,3 \cdot 10^6$	$4 \cdot 10^7$	400	110
^{252}Cf	2,65	2,3	$4,3 \cdot 10^9$	$2,3 \cdot 10^{12}$	1	0,16

Tab. 2. Vergleich einiger Daten von (α ,n)-Quellen und Cf-252

Element (Vorkommen im Körper)	h %	Reaktion	T	σ (bei E_n)	E_γ MeV	I_v %
Sauerstoff (45500 g)		keine Störreaktionen				
Kohlenstoff (12600 g)		keine Störreaktionen				
Wasserstoff (7000 g)		keine Störreaktionen				
Stickstoff (2100 g)		keine Störreaktionen				
Kalzium (1050 g)		keine Störreaktionen				
Phosphor (700 g)		keine Störreaktionen				
Schwefel (175 g)	4,2	$^{34}\text{S}(n,p)^{34}\text{P}$	12,4 s	0,085 b (14MeV)	2,14	25
	0,014	$^{36}\text{S}(n,\gamma)^{37}\text{S}$	5,1 min	0,14 b (therm.)	3,1	90
Kalium (140 g)	93	$^{39}\text{K}(n,2n)^{38}\text{K}$	7,7 min	0,009 b (13,8MeV)	2,17	100
	7	$^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$	12,36 h	1 b (therm.)	1,52	18
		$^{41}\text{K}(n,\alpha)^{38}\text{Cl}$	37,3 min	0,012 b (14MeV)	2,17 1,64	47 38

Tab. 3. Mögliche Störreaktionen der Hauptelemente des Körpers

Element (Vorkommen im Körper)	h %	Reaktion	T	σ (bei E_n)	E_γ MeV	I_γ %
Natrium (105 g)	100	$^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$	15,05 h	0,13 b (therm.)	2,75 1,37	100 100
		$^{23}\text{Na}(n,\alpha)^{20}\text{F}$	11,2 s	0,47 mb (Spalt- neutr.)	1,63	100
Chlor (105 g)	76	$^{35}\text{Cl}(n,2n)^{34m}\text{Cl}$	32,0 min	0,005 b (14MeV)	1,17 2,13 3,30	12 38 12
		$^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$	37,3 min	0,5 mb (therm.)	2,17 1,64	47 38
	24	$^{37}\text{Cl}(n,p)^{37}\text{S}$	5,1 min	0,24 mb (Spalt- neutr.)	3,1	90
	$^{37}\text{Cl}(n,\alpha)^{34}\text{P}$	12,4 s	0,040 b (14MeV)	2,14	25	
Magnesium (35 g)	78,7	$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	15,05 h.	1,3 mb (Spalt- neutr.)	1,37 2,75	100 100
	11	$^{26}\text{Mg}(n,\alpha)^{23}\text{Ne}$	38,0 s	0,089 b (14MeV)	0,44 1,64	33 0,9
Eisen (4 g)	keine Störreaktionen					

Fortsetzung der Tab. 3

Zylinder	r ₁ mm	r ₂ mm	w ₁ mm	l mm	inneres Volumen cm ³
A1	10,5	24,0	2,5	38	35,5
A2	15,0	27,0	2,5	38	37,7
A3	20,0	30,0	2,5	38	29,7
B1	10,5	24,0	2,5	89	80,3
B2	15,0	27,0	2,5	89	86,3
B3	20,0	30,0	2,5	89	68,5

Quader	l ₁ mm	l ₂ mm	l ₃ mm	w ₂ mm	inneres Volumen cm ³
Q1	136,0	87,5	6,5	3,0	78,7

Tab. 4. Geometrische Daten der Versuchsobjekte

Bezeichnung der verwendeten Massen	Inhalt der Zylinder in	
	g Ca	g P
Masse 1	1,76	2,08
Masse 2	3,52	4,17
Masse 3	5,28	6,25

Tab. 5. Inhalt der Probenbehälter bei der
Aktivierung von Ca bzw. P

Proben- behälter	Spezif. Aktivität in $\text{min}^{-1} \text{g}^{-1}$		
	Masse 1	Masse 2	Masse 3
B1	116	112	110
B2	105	104	104
B3	96	94	94

Tab. 6. Spezifische Aktivität bei Aktivierung
von Ca-Lösungen ($t_b = 5 \text{ min}$);
der Einfluß der Messung ist korrigiert

Proben- behälter	Spezif. Aktivität in $\text{min}^{-1} \text{g}^{-1}$		
	Masse 1	Masse 2	Masse 3
B1	437	405	389
B2	323	308	298
B3	287	268	255

Tab. 7. Spezifische Aktivität bei Aktivierung
von P-Lösungen ($t_b = 2 \text{ min}$);
der Einfluß der Messung ist korrigiert

r cm	\dot{D}_{ber} rem/min	\dot{D}_{gem} rem/min
1	16,5	14,2
1,5	10,5	10,0
2	7,5	7,3
3	4,5	4

Tab. 8. Werte der Dosisrate \dot{D} bei 190 μg Cf-252

Detektor- abstand cm	relative Impuls- ausbeute	
	B2	Q1
6	100	90
8	86	78
10	75	68

Tab. 9. Einfluß des Detektorabstands
auf die Impulsausbeute bei
verschiedenen Probenbehältern

Versuchs- person	Impulszahlen (Hand geschlossen)		
	Ca	P	Ca/P
P1	1095 ± 52	585 ± 43	1,9 ± 0,2
P2	1235 ± 55	765 ± 47	1,6 ± 0,2
P3	1400 ± 55	860 ± 48	1,6 ± 0,2

Versuchs- person	Impulszahlen (Hand gestreckt)		
	Ca	P	Ca/P
P1	1875 ± 62	900 ± 55	2,1 ± 0,2
P2	2100 ± 63	975 ± 55	2,2 ± 0,2

Tab. 10. In-vivo-Aktivierung von Händen bei verschiedenen Meßgeometrien.

Versuchsdaten: $t_b = 90$ s, $t_w = 60$ s,
 $t_m = 15$ min (Ca) bzw. 5 min (P)

Die Impulszahlen sind auf $190 \mu\text{g Cf-252}$ umgerechnet und mit ihren statistischen Fehlern (1σ) angegeben.

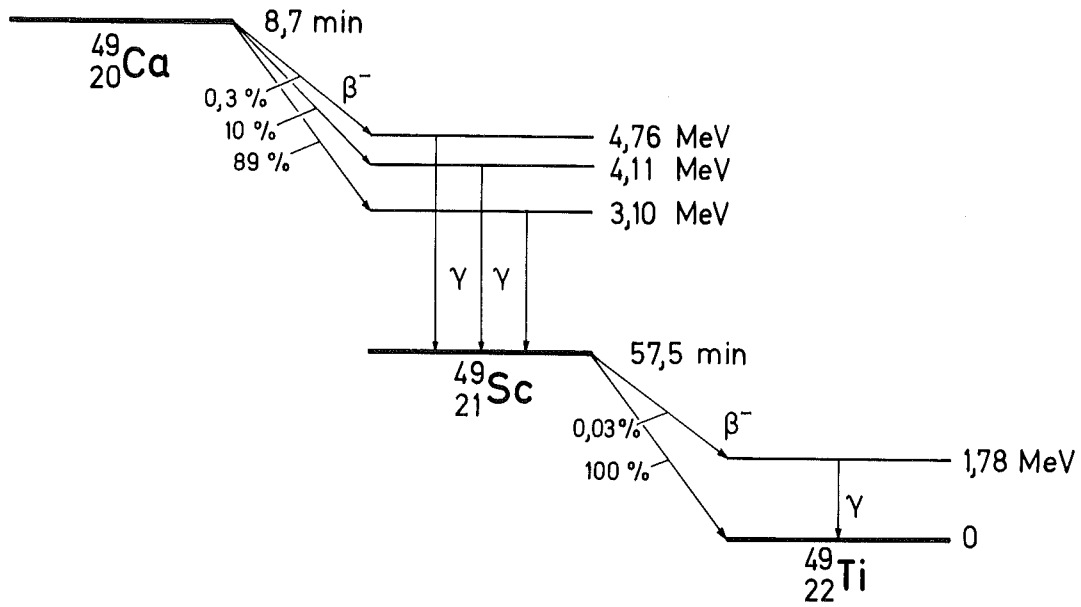


Abb. 1. Zerfallsschema von Ca-49

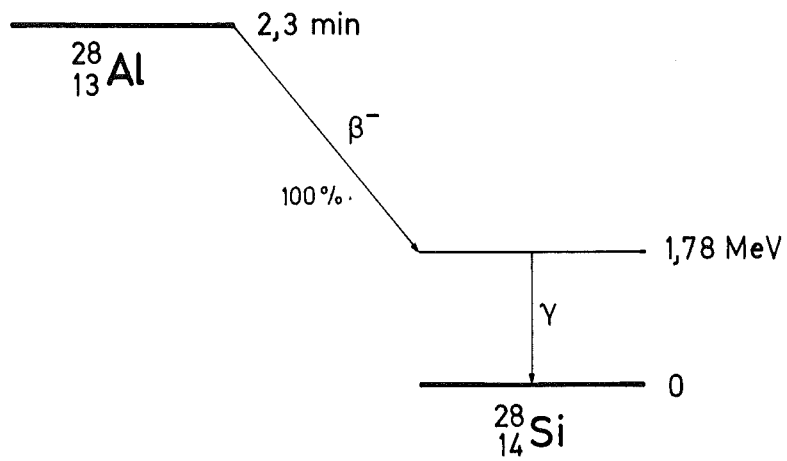


Abb. 2. Zerfallsschema von Al-28

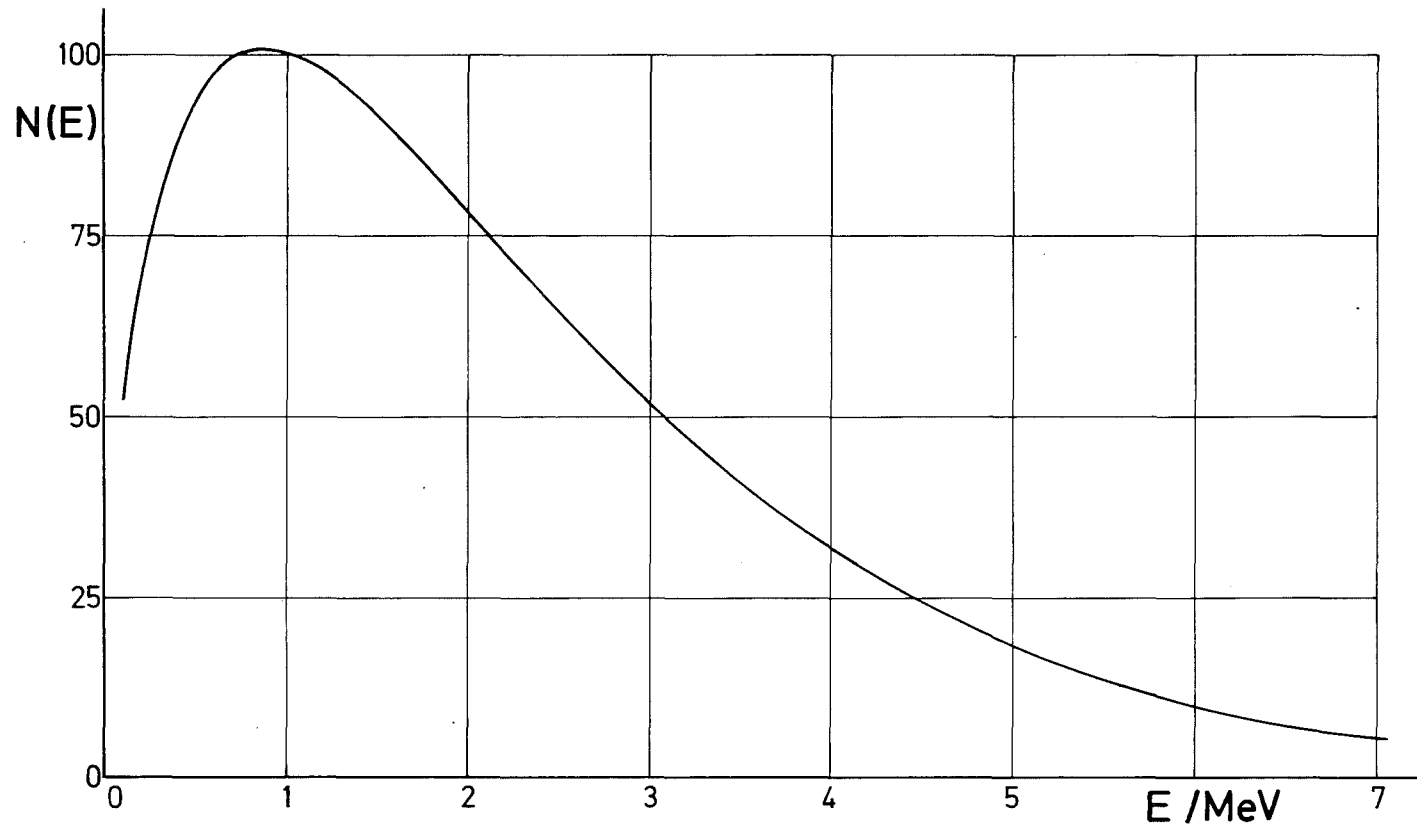


Abb. 3. Energieverteilung der Neutronen von Cf-252
(Ordinatenmaßstab willkürlich)

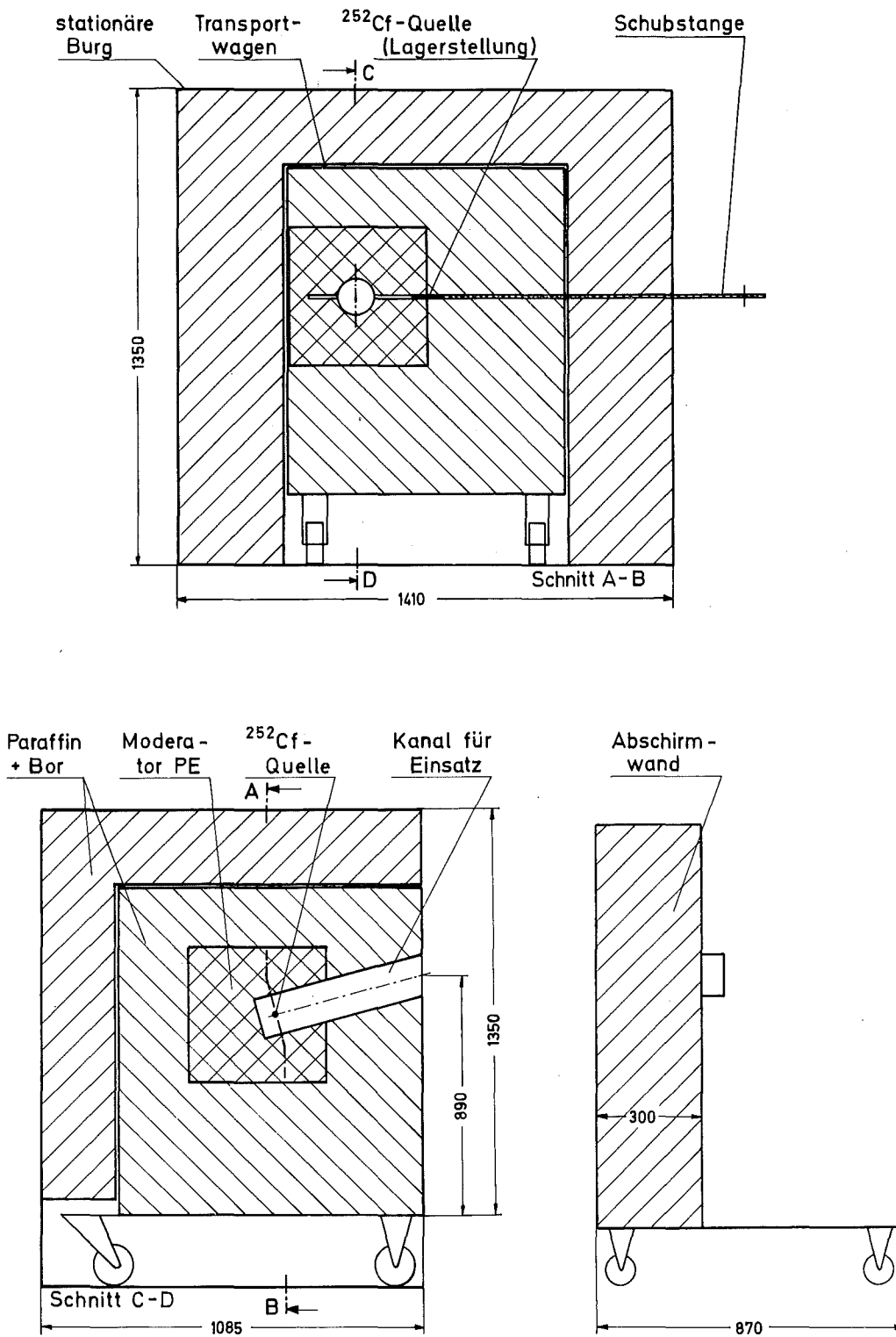


Abb. 4. Bestrahlungsanlage (Schnittzeichnungen)

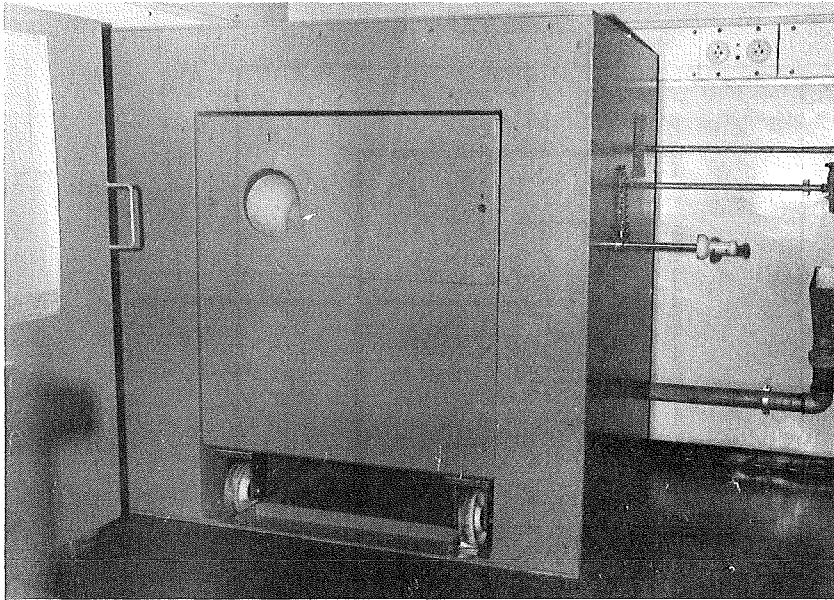


Abb. 5. Bestrahlungsanlage (Foto)

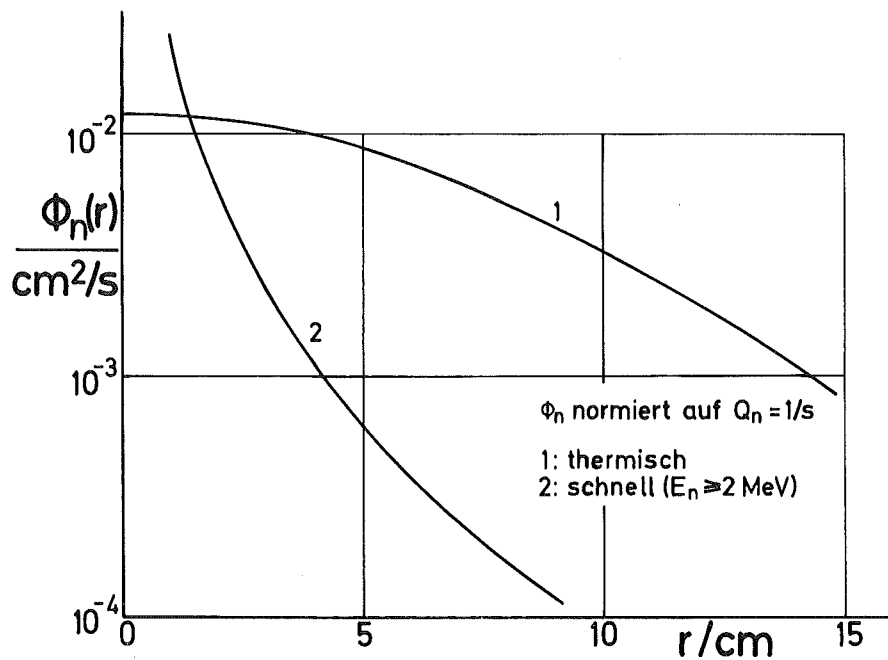


Abb. 6. Neutronenflußdichte einer Cf-252-Punktquelle in Wasser (normiert auf $Q_n = 1/\text{s}$)

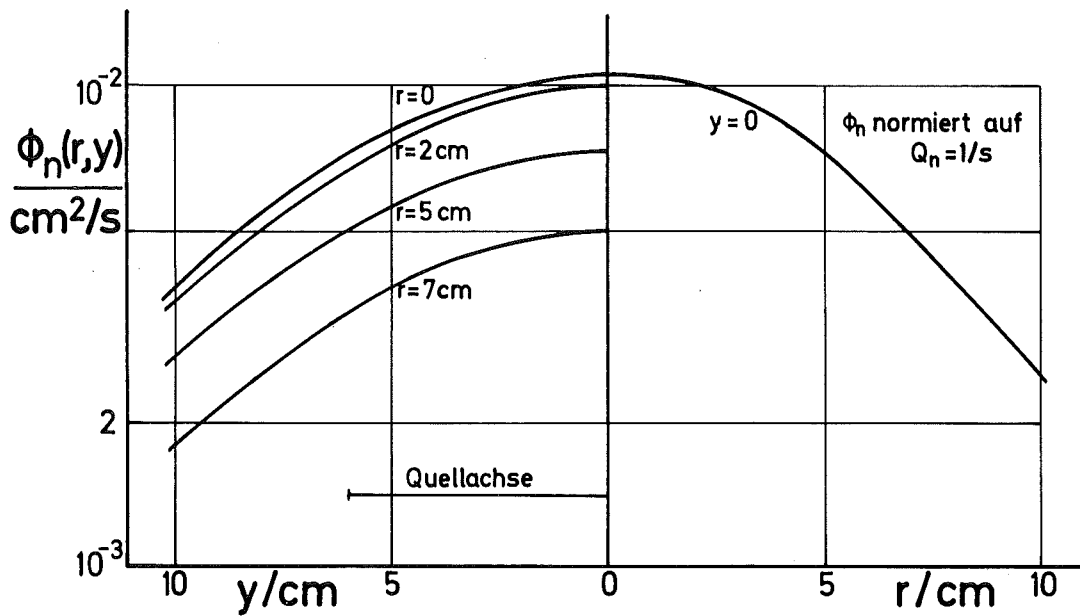


Abb. 7. Flußdichte der thermischen Neutronen einer Cf-252-Stabquelle (Länge 12 cm) in Wasser (normiert auf $Q_n = 1/\text{s}$). Die Stabachse liegt in y -Richtung.

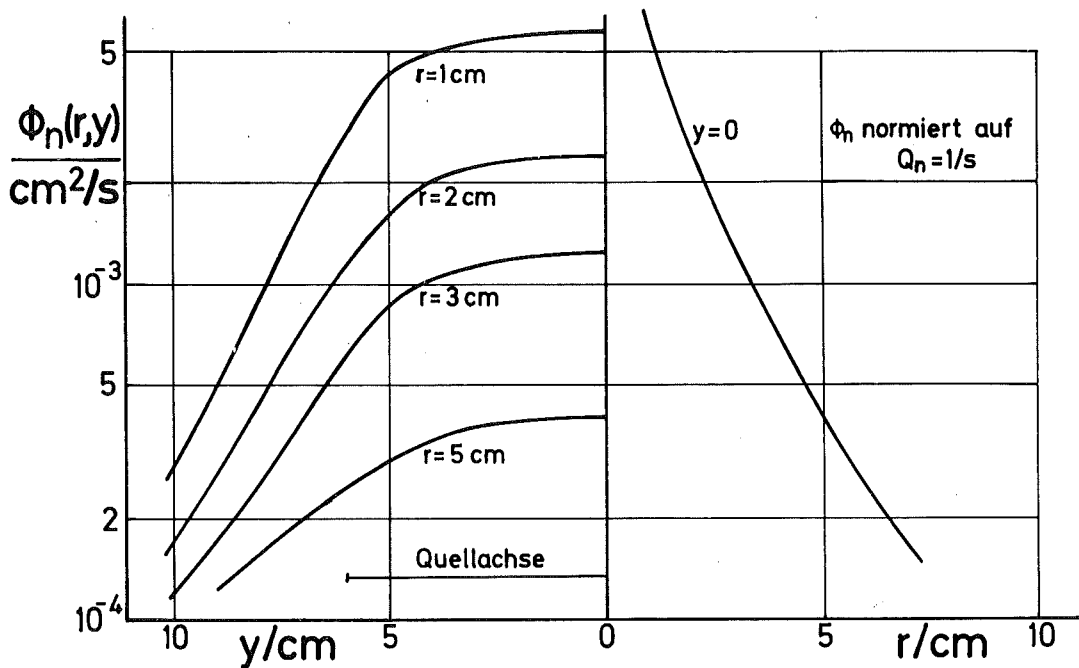


Abb. 8. Flußdichte der schnellen Neutronen ($E_n \geq 2\text{ MeV}$) der Cf-252-Stabquelle nach Abb. 7

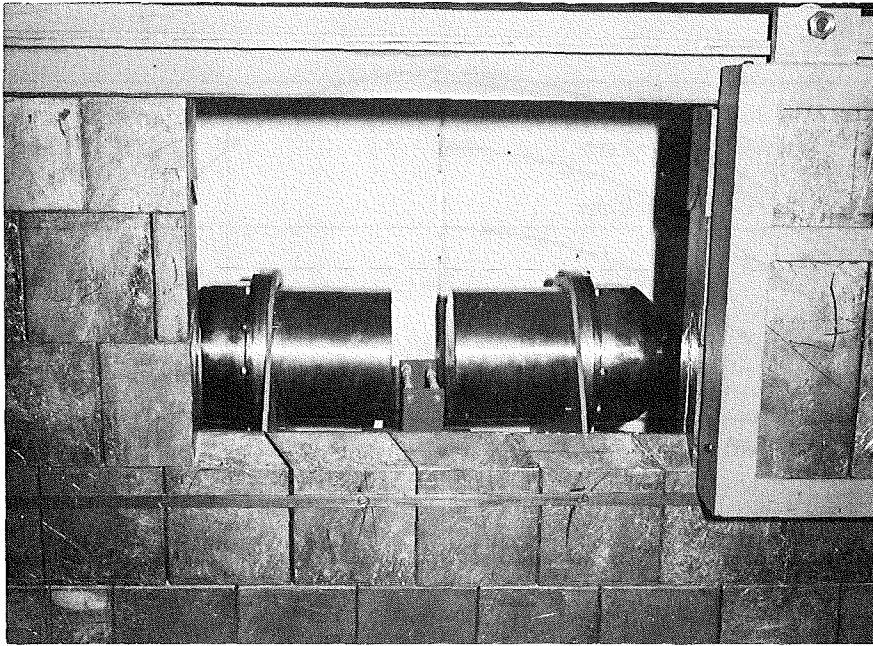


Abb. 9. Teil der abgeschirmten Meßzelle
mit den NaJ(Tl)-Detektoren

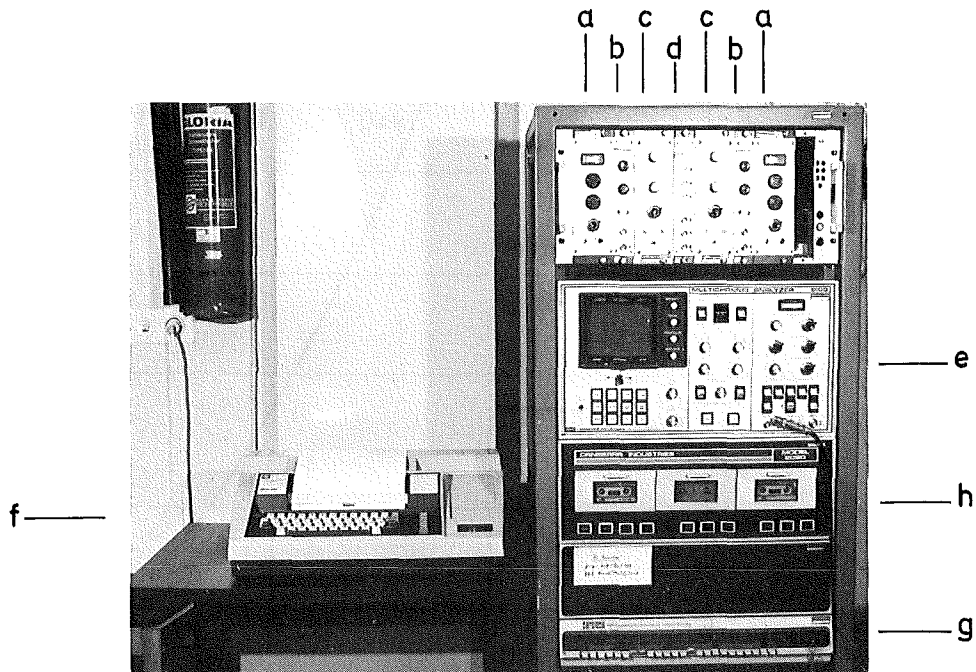


Abb. 10. Meß- und Auswerteelektronik
(vgl. Abb. 11)

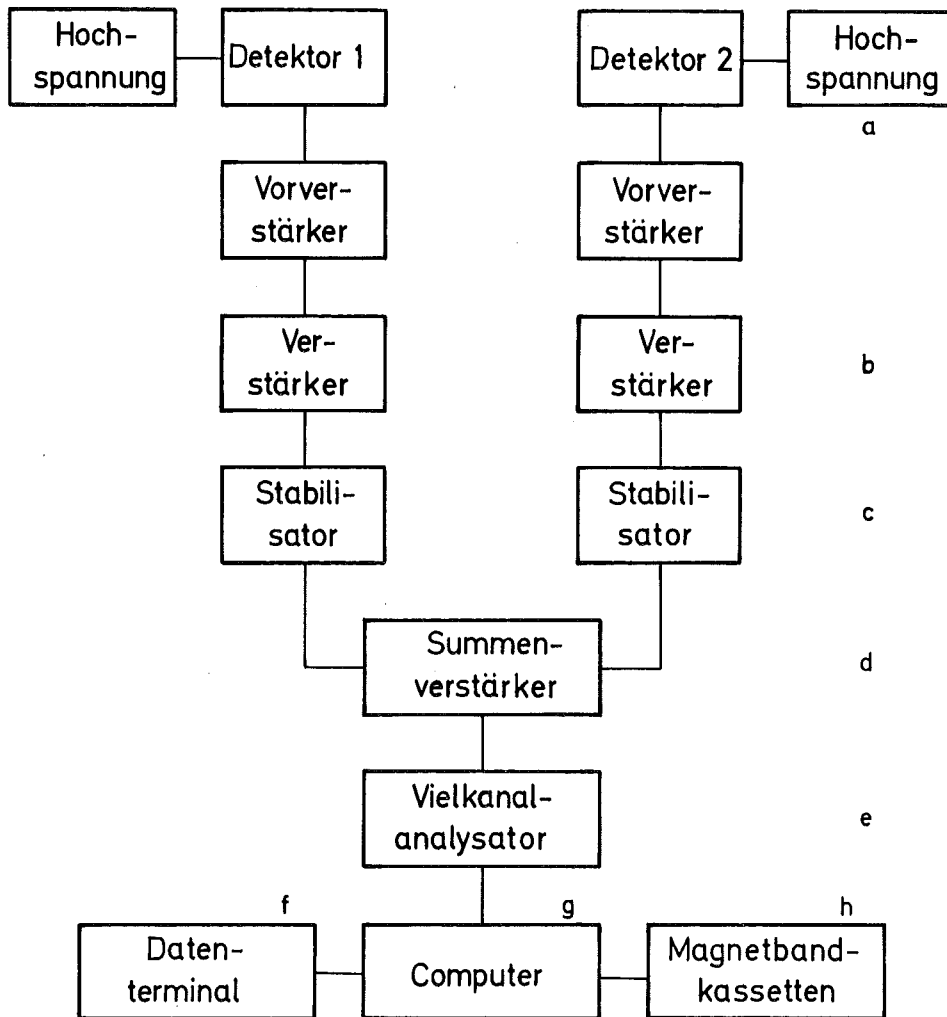


Abb. 11. Schema der elektronischen Meßkette

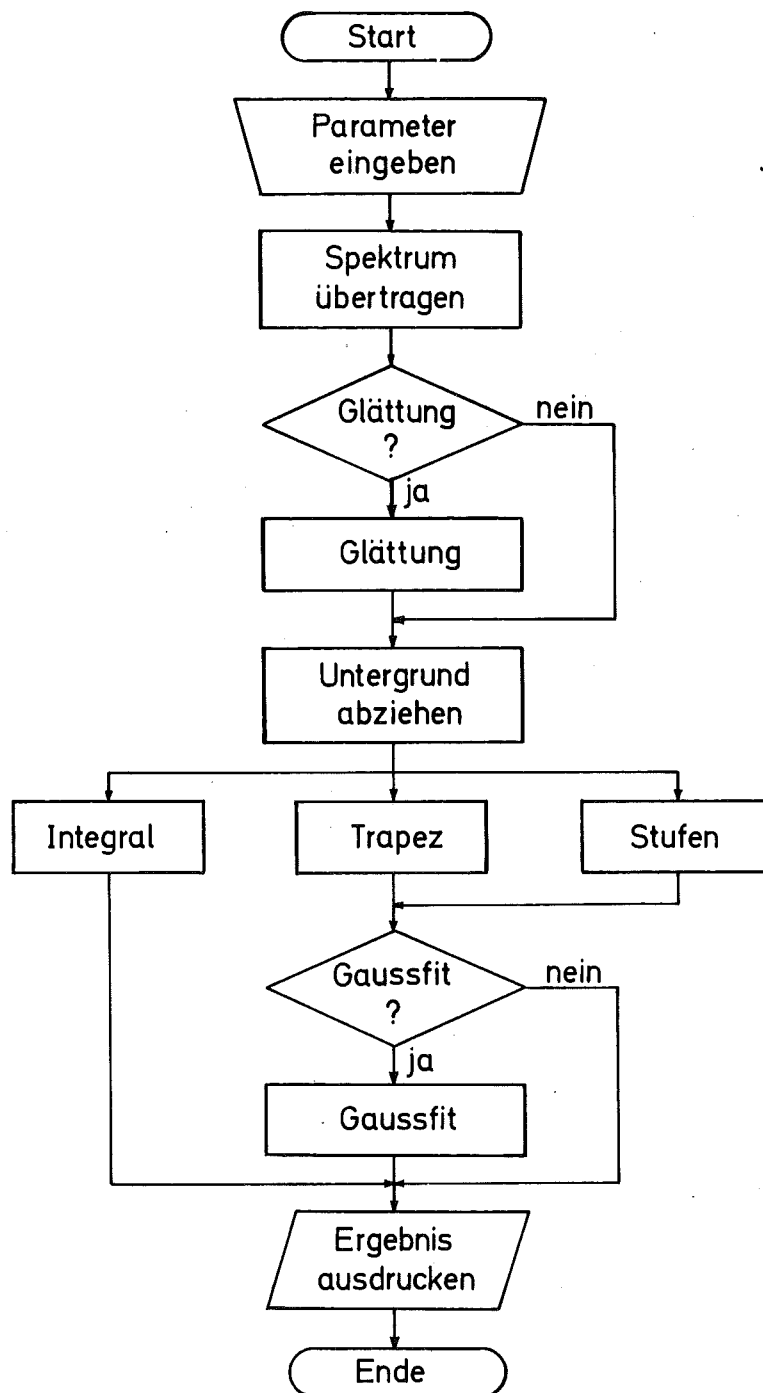


Abb. 12. Flußschema des Auswerteprogramms

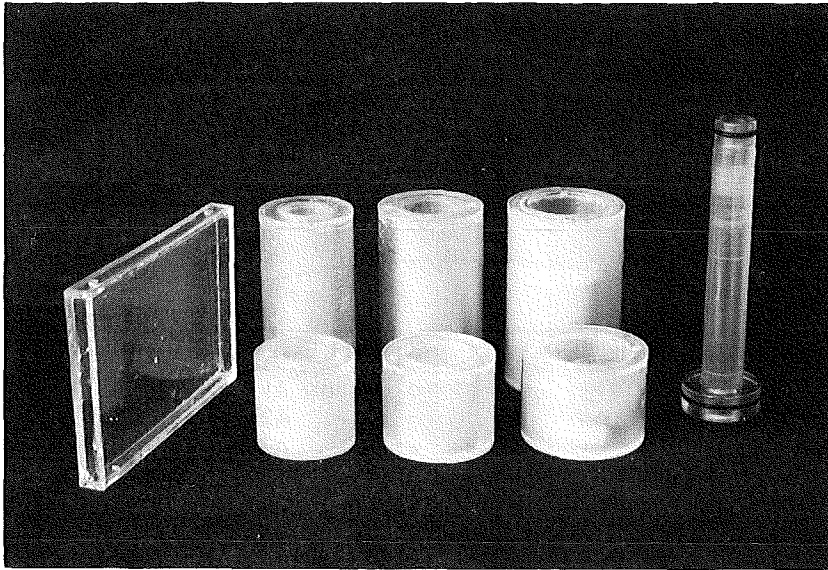


Abb. 13. Verwendete Probenbehälter (Hohlzylinder und Quader) sowie Abstandshalter (rechts)

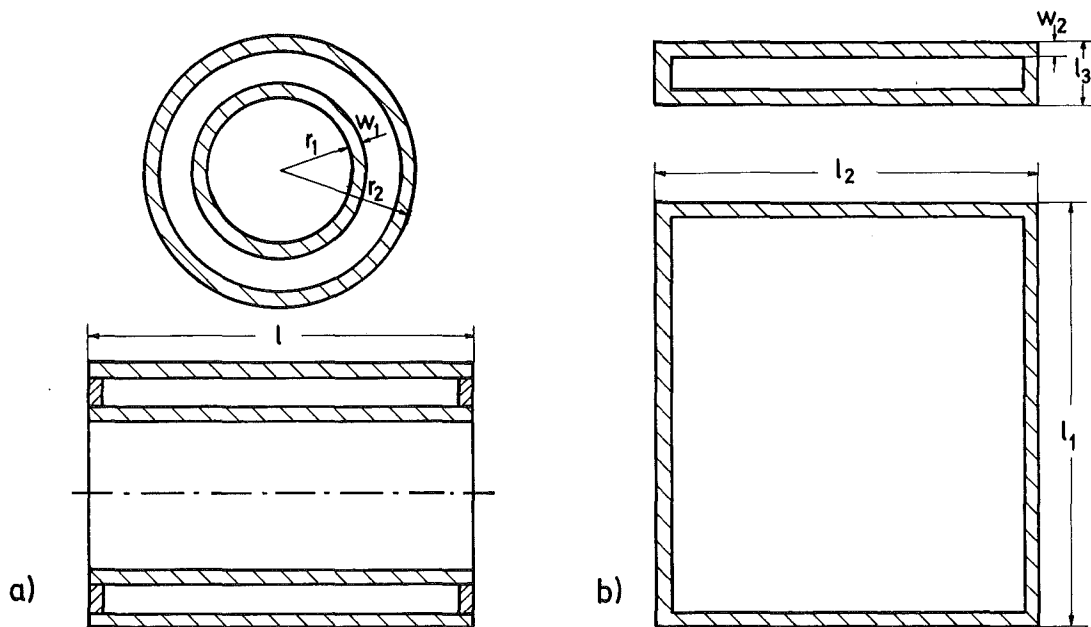


Abb. 14. Hohlzylinder und Quader als Modelle der Hand.
a) Hohlzylinder; b) Quader

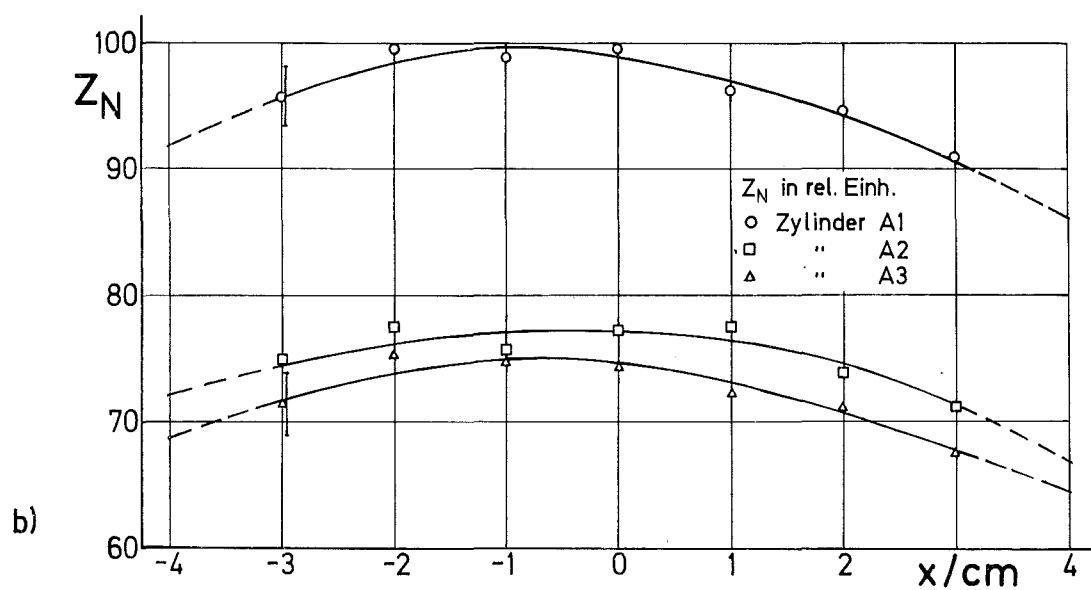
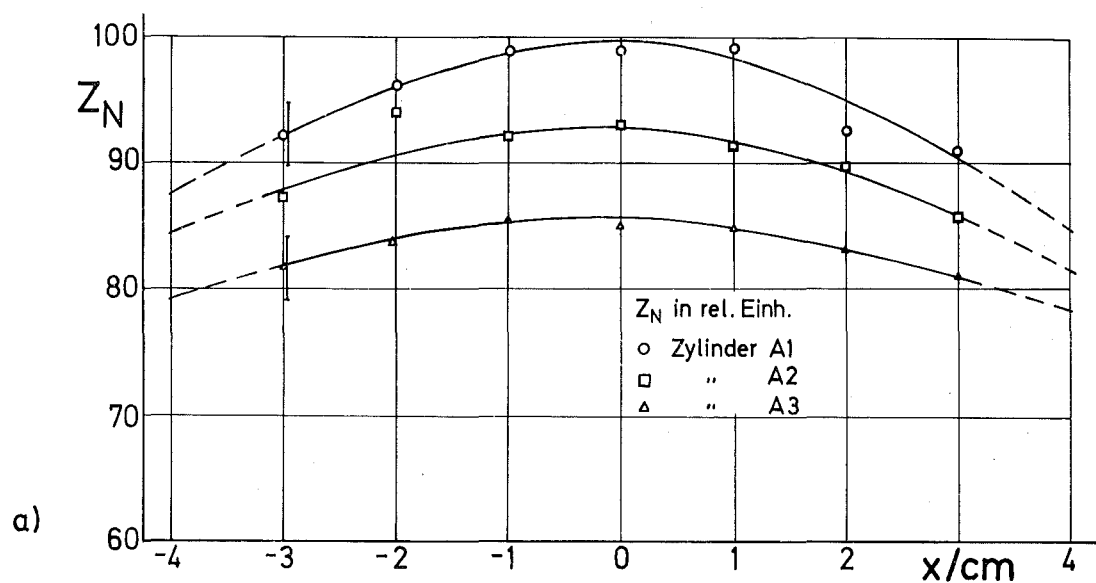


Abb. 15. Flußdichteverteilung der Neutronen in der Bestrahlungsanlage, gemessen durch Aktivierung von Ca- und P-Lösungen.
 a) thermische Neutronen; b) schnelle Neutronen

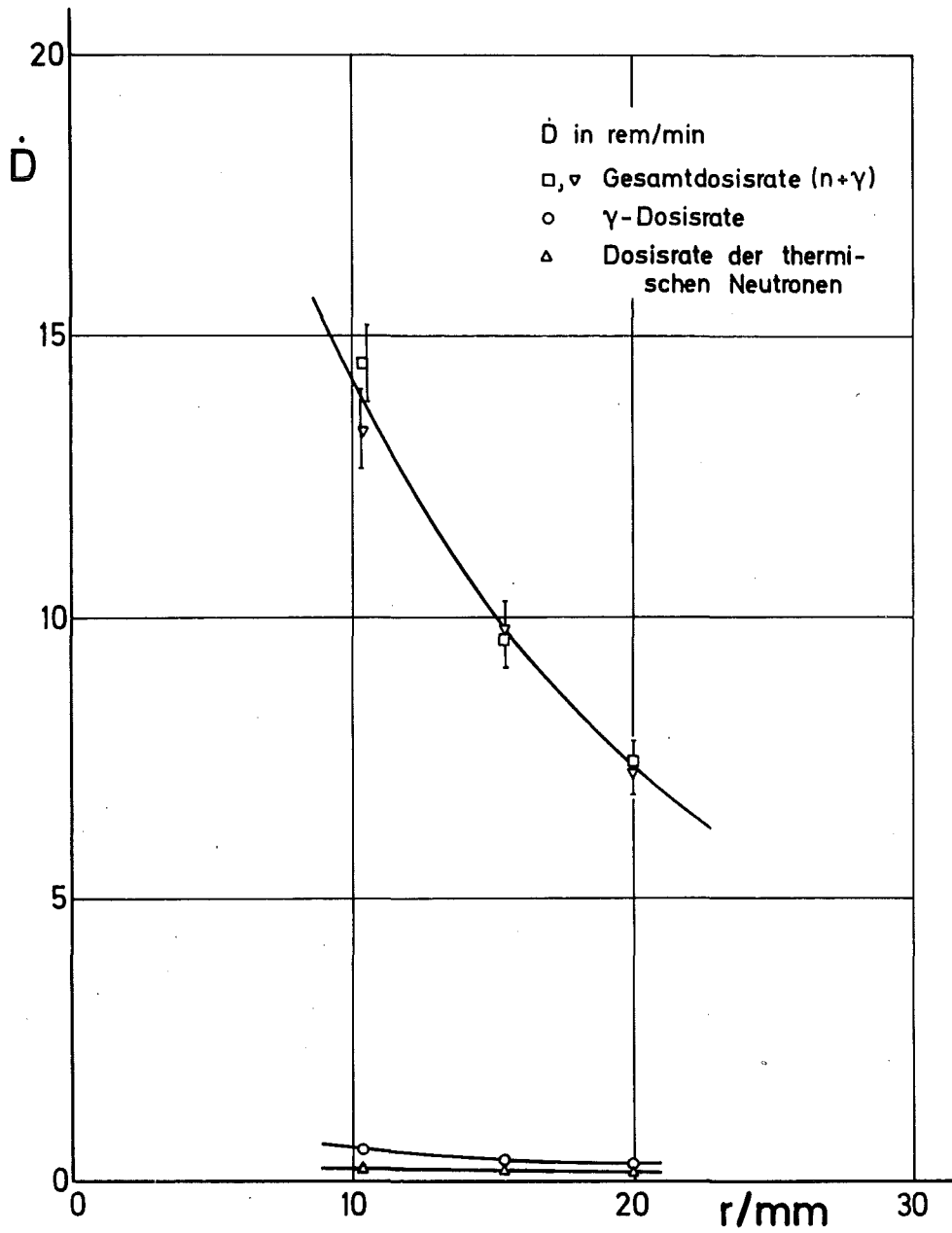


Abb. 16. Dosisrate von Cf-252 in verschiedenen Abständen von der Stabquelle

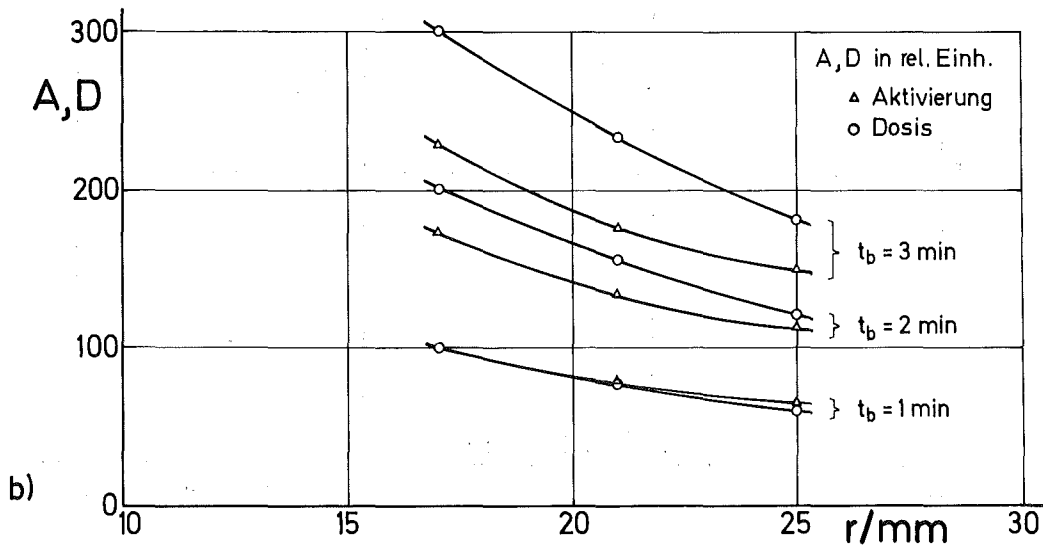
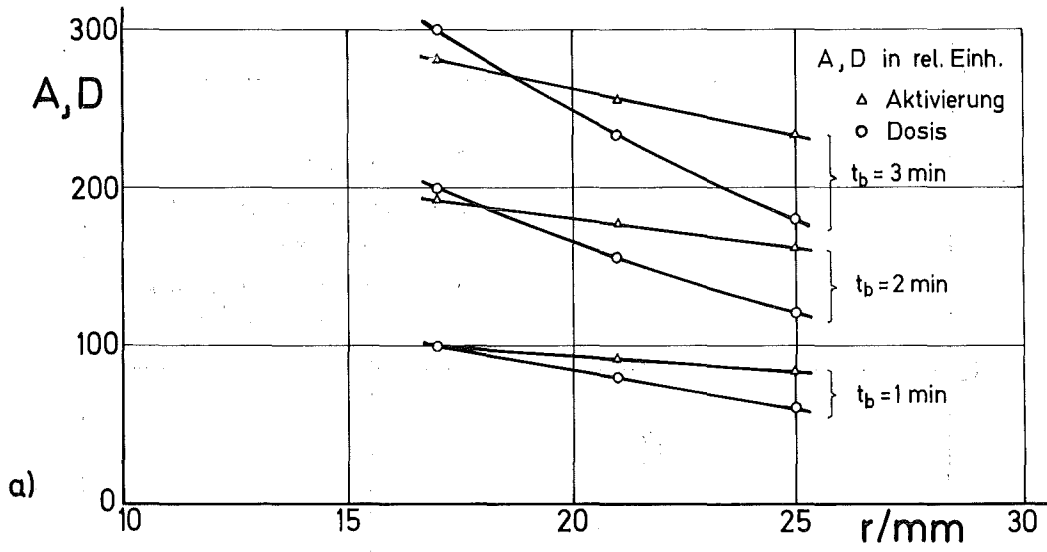


Abb. 17. Vergleich von Aktivierung und Dosis in Abhängigkeit vom Abstand zur Quelle und von der Bestrahlungszeit.

a) Aktivierung von Ca

b) Aktivierung von P

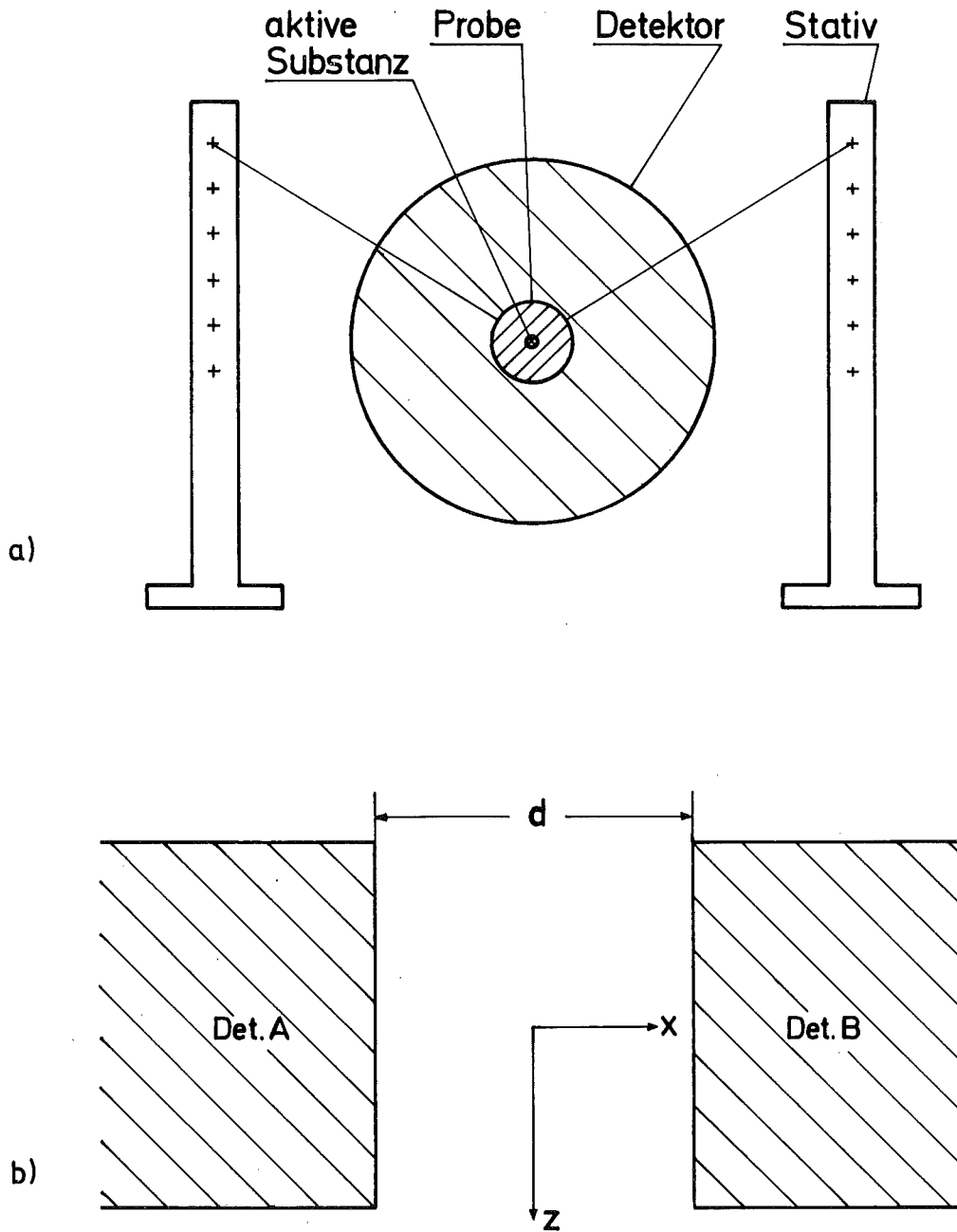


Abb. 18. Ausmessen des Detektorsystems mit einer Punktquelle.
a) Aufhängung der Probe; Schnitt bei $x = 0$
b) Definition der Bezeichnungen

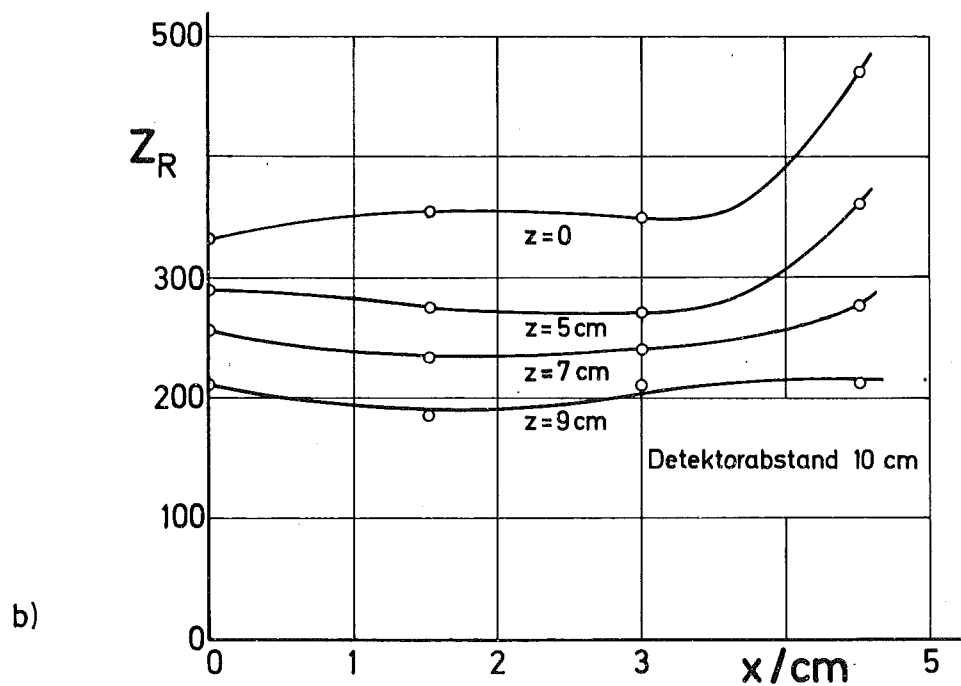
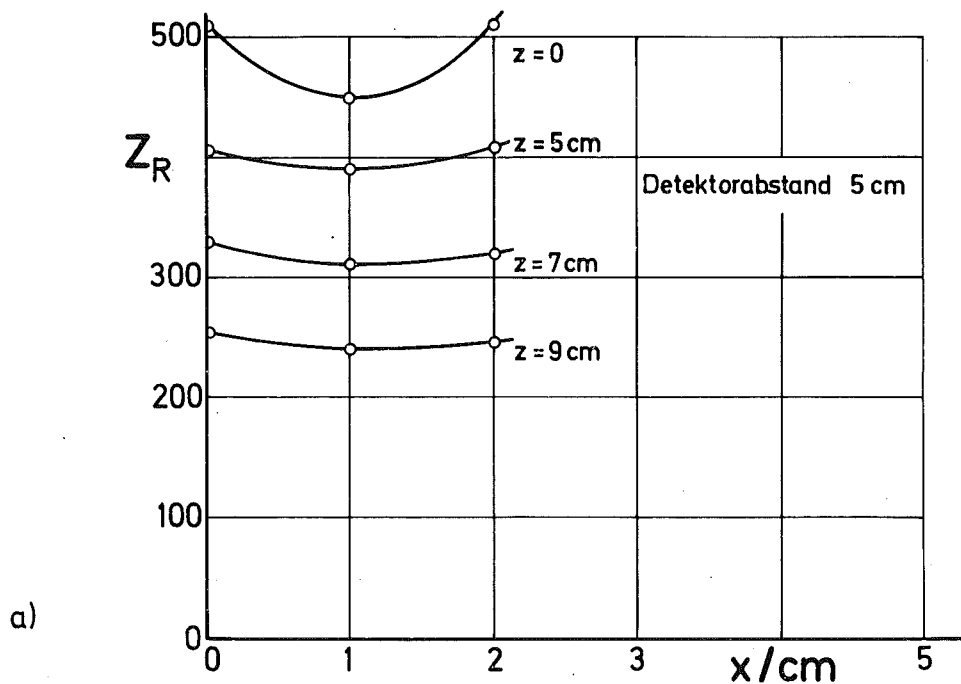


Abb. 19. Ausmessen des Detektorsystems mit einer Punktquelle. Abhängigkeit der Zählrate von x bei $z = \text{konst.}$ und verschiedenen Detektorabständen.

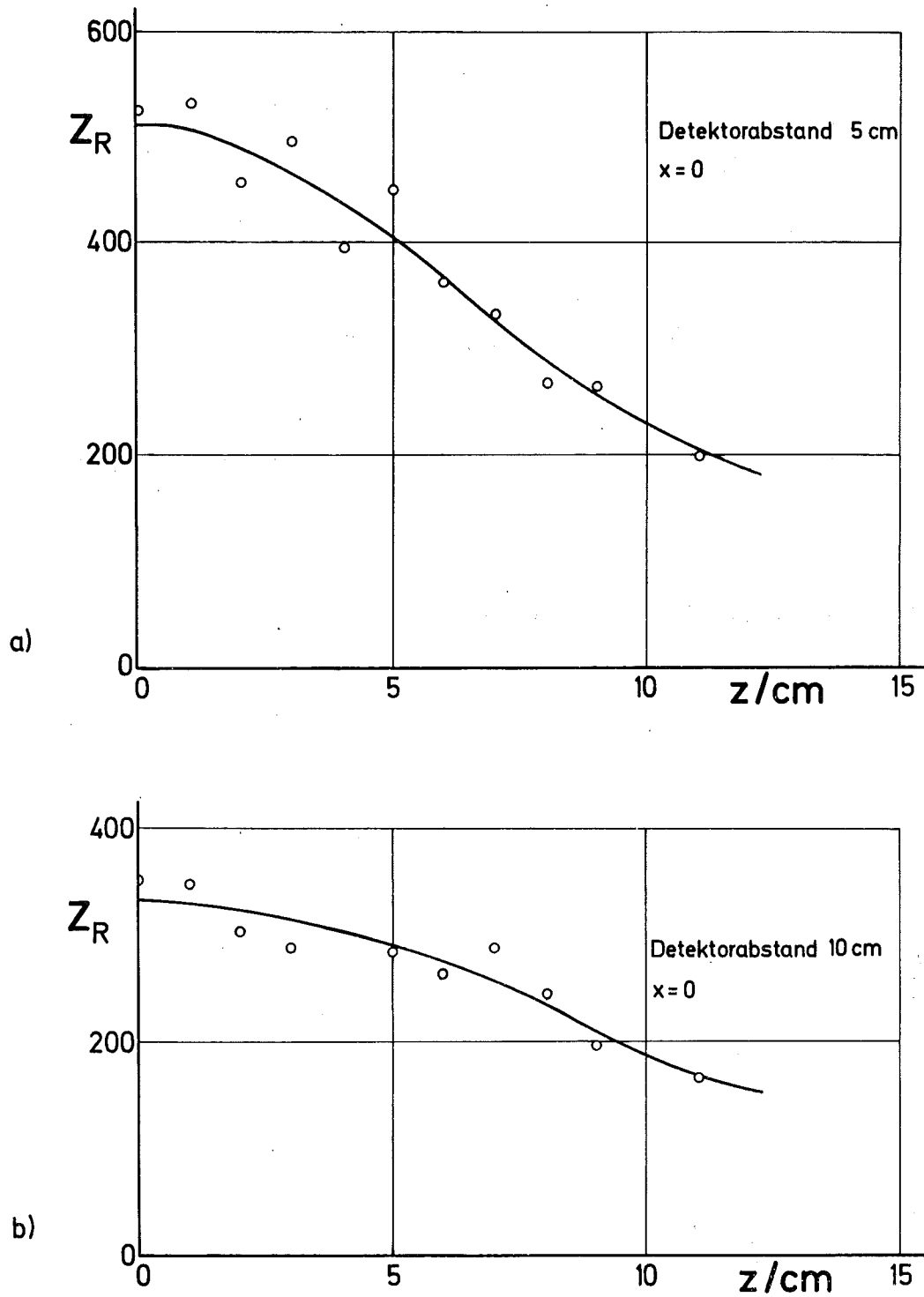


Abb. 20. Ausmessen des Detektorsystems mit einer Punktquelle. Abhängigkeit der Zählrate von z bei $x = 0$ und verschiedenen Detektorabständen.

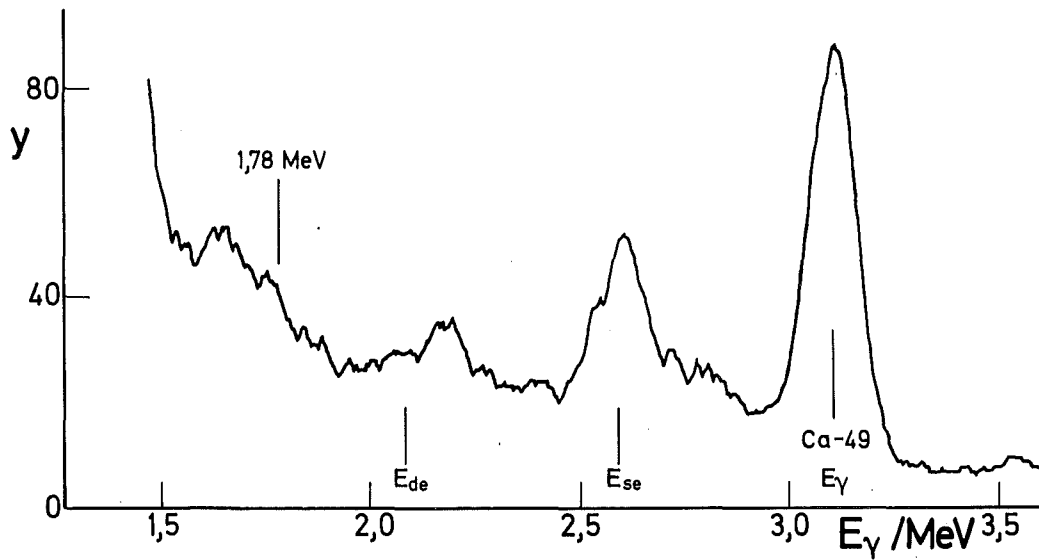


Abb. 21. Spektrum von aktiviertem Ca

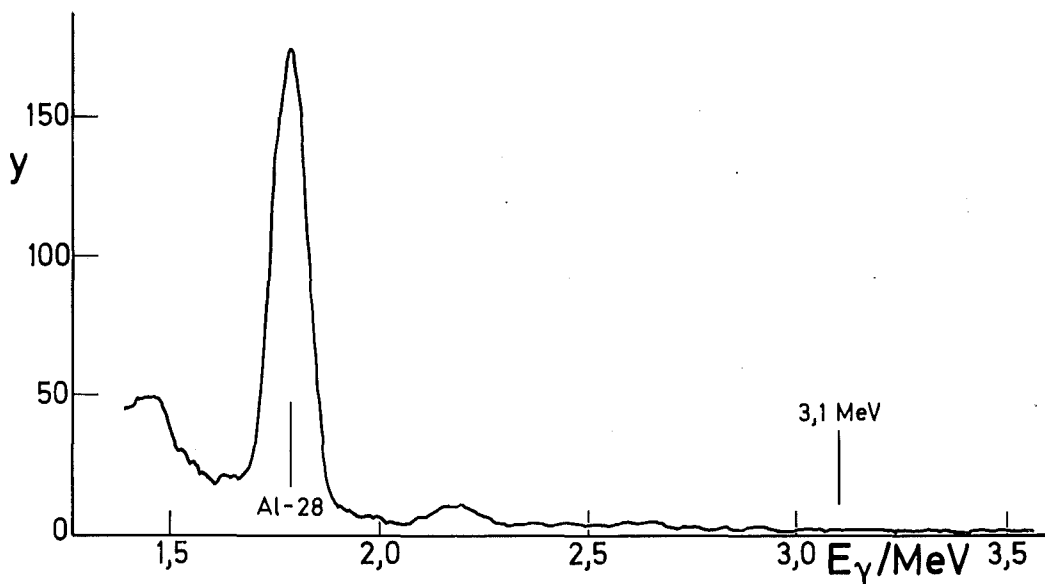


Abb. 22. Spektrum von aktiviertem P

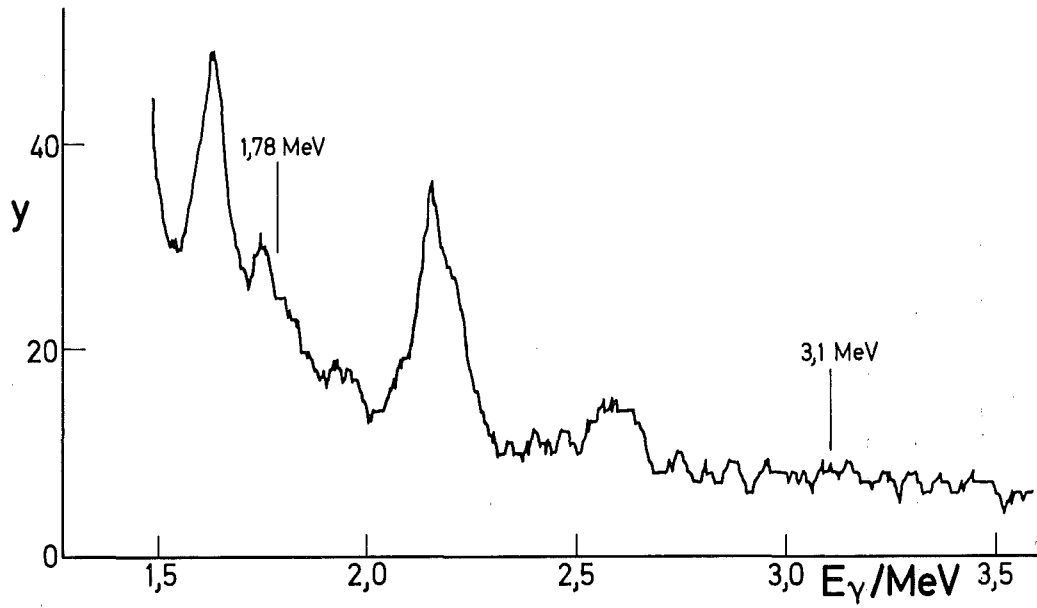


Abb. 23. Spektrum von aktiviertem S

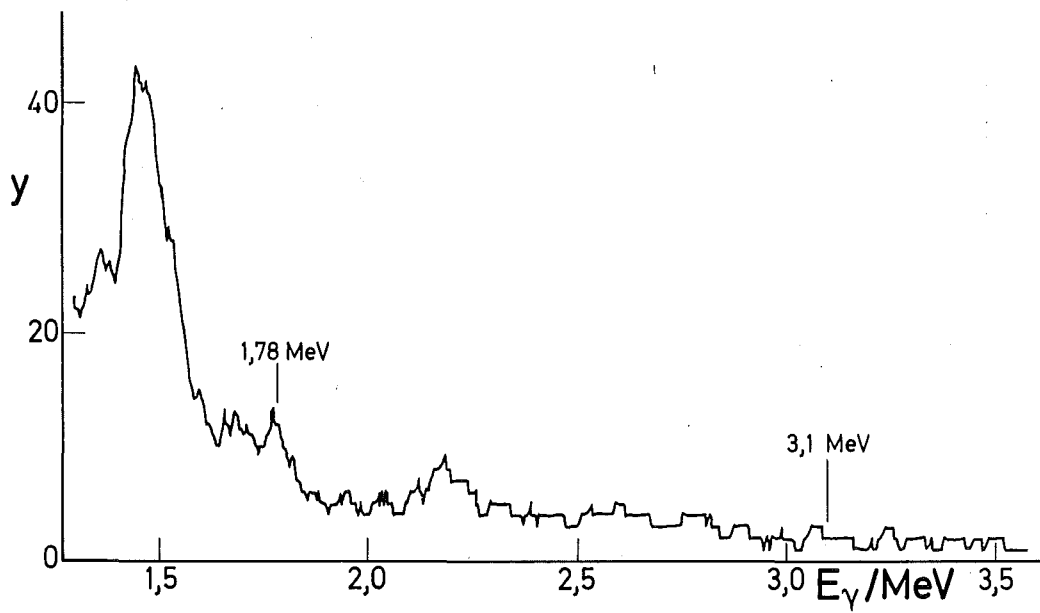


Abb. 24. Spektrum von aktiviertem K

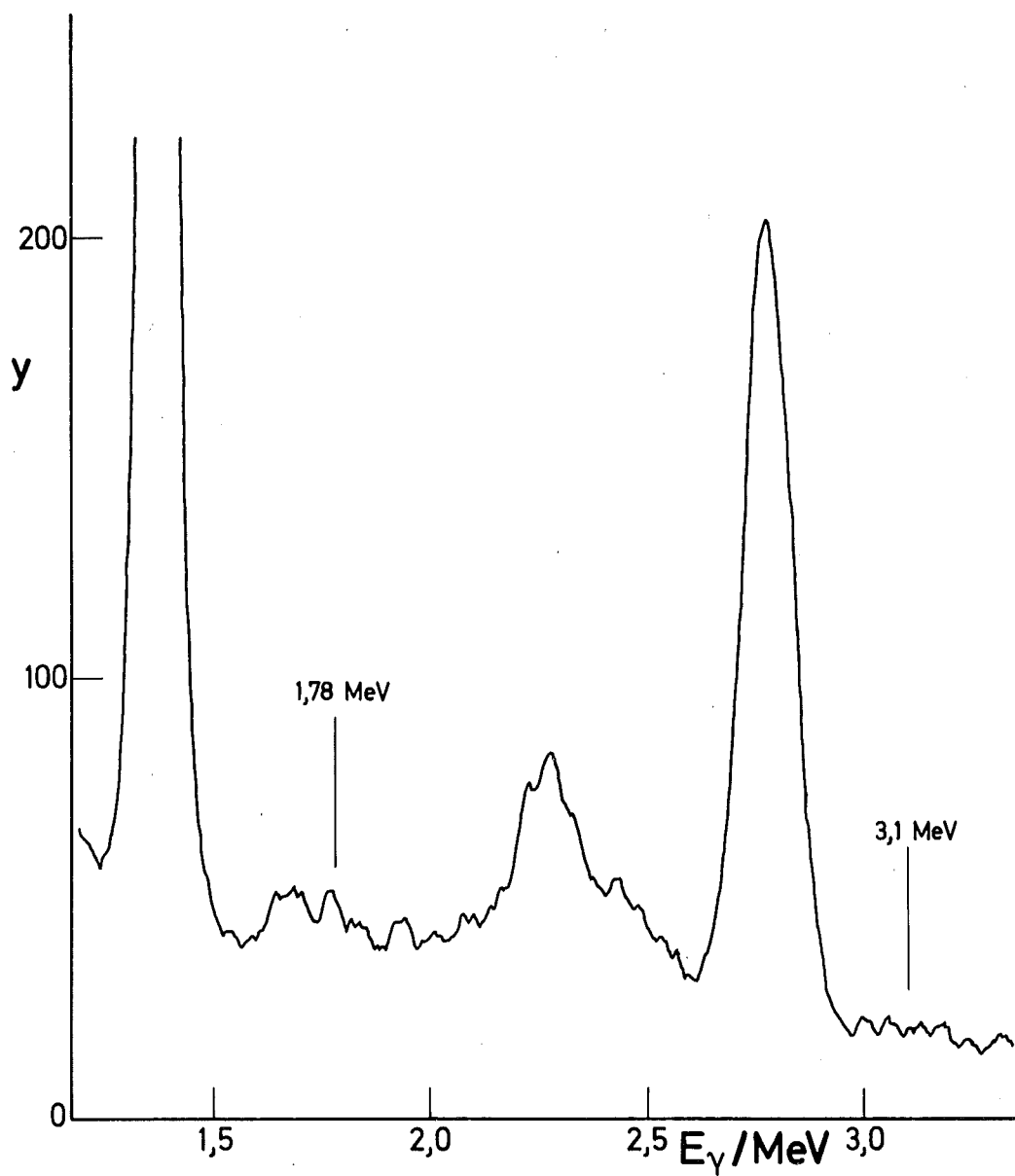


Abb. 25. Spektrum von aktiviertem Na

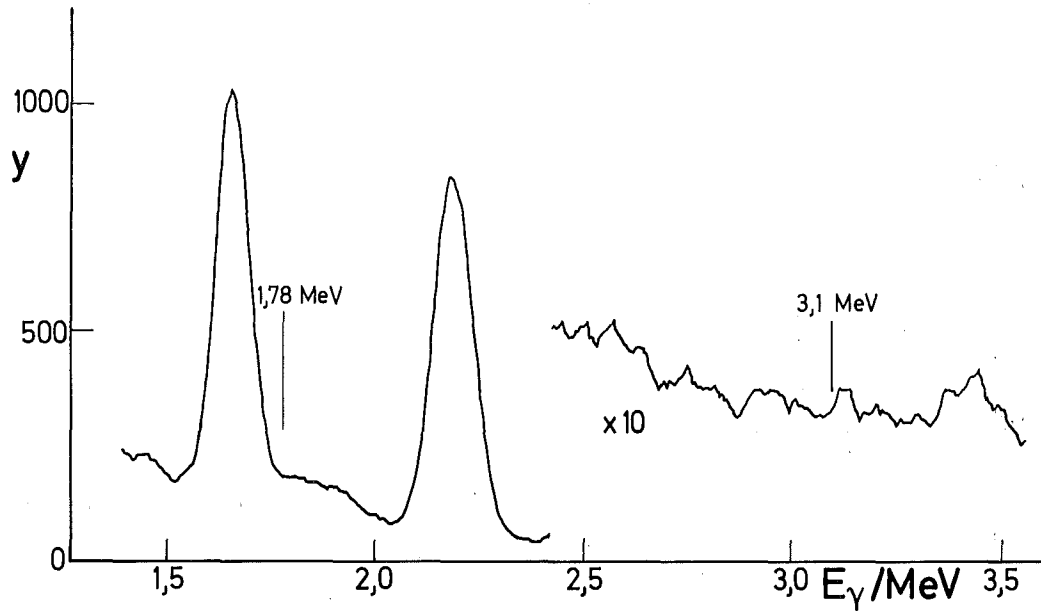


Abb. 26. Spektrum von aktiviertem Cl

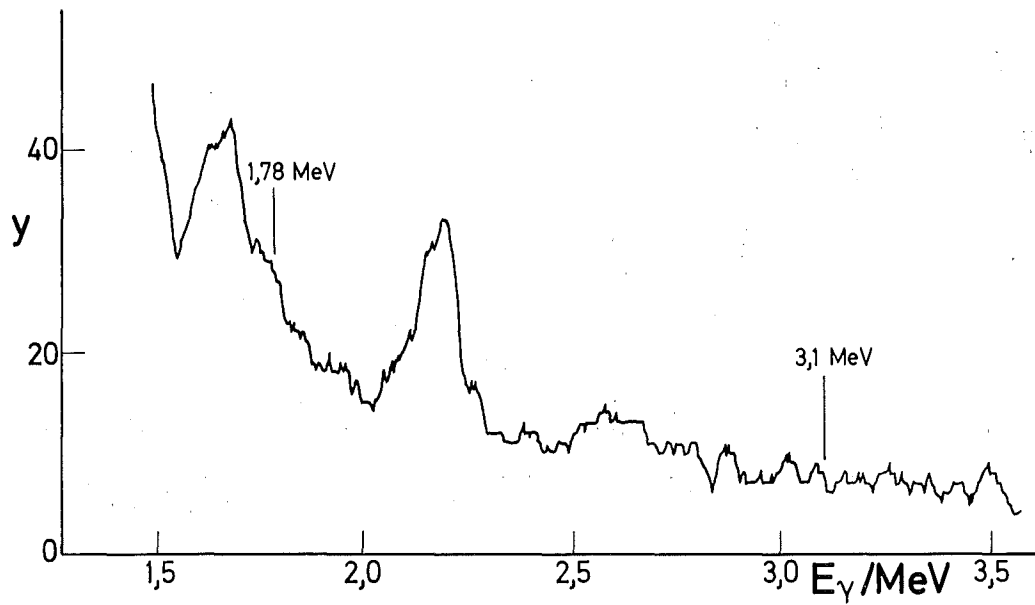


Abb. 27. Spektrum von aktiviertem Mg

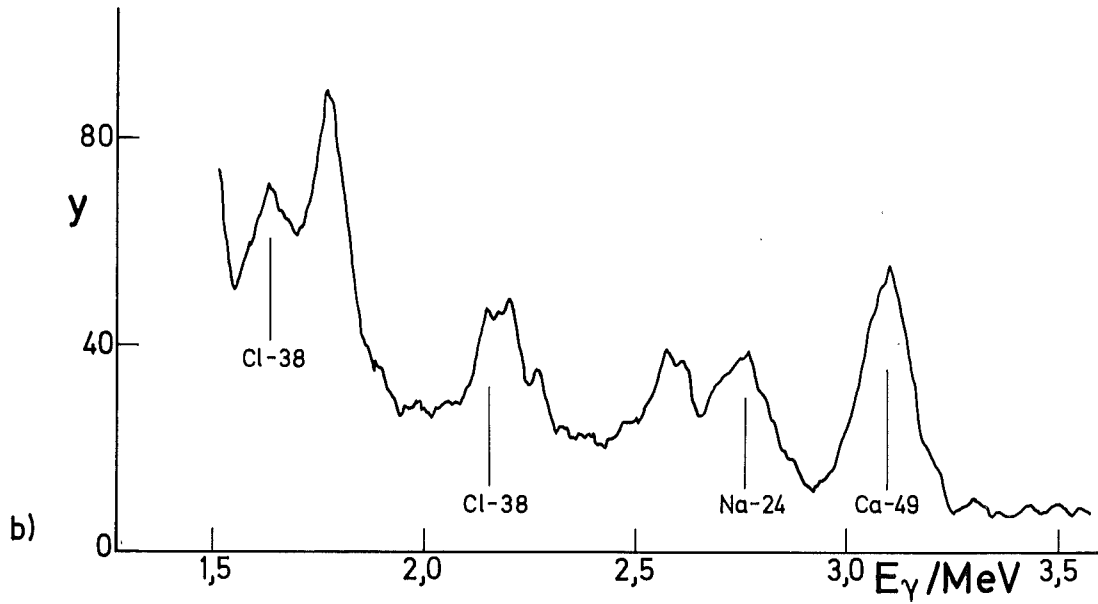
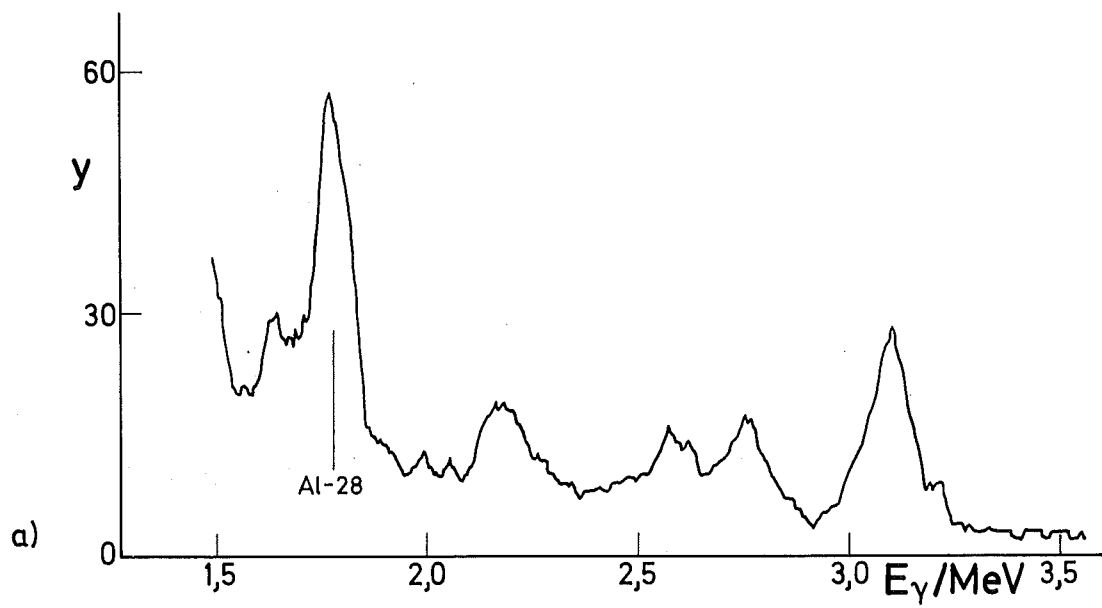


Abb. 28. Spektrum einer aktivierten Hand.

$t_b = 90 \text{ s}$, $t_w = 25 \text{ s}$

a) $t_m = 5 \text{ min}$; b) $t_m = 15 \text{ min}$

Anhang 1: Verwendete Chemikalien

Calciumnitrat p.a., $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
Merck-Nr. 2121

di-Ammoniumhydrogenphosphat p.a., $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$
Merck-Nr. 1207

Natriumnitrat p.a., NaNO_3
Merck-Nr. 6537

Schwefelsäure Titrisol, H_2SO_4
Merck-Nr. 9981/0001

Kalilauge Titrisol, KOH
Merck-Nr. 9918/0001

Salzsäure Titrisol, HCl
Merck-Nr. 9970/0001

Magnesium-Späne
Merck-Nr. 805817

Anhang 2: Meßgeräte

NaJ(Tl)-Detektor 5"Ø x 4"
in Kristall-Photomultiplier-Verbundmontage
Auflösung besser als 8%
Low-Background-Ausführung
2 Stück
Fa. Bicron Corp., Newbury/Ohio, USA

Photomultiplier Base und Vorverstärker
Ortec Model 276
2 Stück
Fa. Ortec GmbH., München

High Voltage Power Supply
Ortec Model 456
Spannungsbereich 50 bis 3000 V
2 Stück
Fa. Ortec GmbH., München

Verstärker

Ortec Model 485
2 Stück
Fa. Ortec GmbH., München

Stabilisator (X-Ray Stabilizer)

Canberra Model 1720
Stabilisierung der Verstärkung auf $\pm 0,05\%$
2 Stück
Fa. Canberra Elektronik GmbH., München

Summenverstärker (Dual Sum and Invert Amplifier)

Ortec Model 433A
Fa. Ortec GmbH., München

Vielkanalanalysator

Canberra Model 8100
4096 Kanäle
Fa. Canberra Elektronik GmbH., München

Magnetbandkassettengerät

Canberra Model 2020
mit 3 Kassetteneinheiten
Fa. Canberra Elektronik GmbH., München

Kleincomputer PDP11/05

16k Worte mit 16 bit Wortlänge
Fa. Digital Equipment Corp., Maynard/Mass., USA

Datenterminal Silent 700

Model 733 KSR
Fa. Texas Instruments Deutschland GmbH., Frankfurt