

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

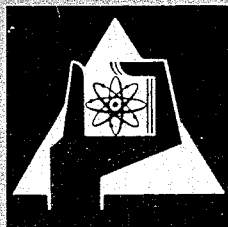
August 1968

KFK 856

Abteilung Strahlenschutz und Dekontamination

Plutonium-Inkorporationsnachweis durch Direktmessung

H. Kiefer, R. Maushart



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



Internationale Monatszeitschrift für angewandte Atomenergie in Technik, Industrie, Naturwissenschaften, Medizin, einschließlich Biophysik und Strahlenschutz unter besonderer Berücksichtigung der Raumfahrtforschung und -technik

Hauptschriftleiter Prof. Dr. rer. nat. Dr. med. E. H. Graul, 355 Marburg/Lahn, Lahnstraße 4a

Verlag G. Braun, 75 Karlsruhe 1, Karl-Friedrich-Straße 14-18 · Postfach 1709 · Telefon: \* 26951 · Telex: 7826904 vgb d

## Plutonium-Inkorporationsnachweis durch Direktmessung

Von H. Kiefer und R. Maushart

Aus der Hauptabteilung Strahlenschutz und Dekontamination, Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

### 1. Einführung

Die Gefahr der Einlagerung in den menschlichen Körper, wobei die Knochen das kritische Organ darstellen, besteht bei Plutonium in erster Linie durch Inhalation oder durch Einbringen in Wunden, während eine Plutoniumaufnahme über den Magen-Darm-Kanal relativ ungefährlich ist, da der Körper auf diesem Wege kaum Plutonium resorbiert. Nach jeder Inkorporation ist man bestrebt, so schnell wie möglich eine zuverlässige Angabe über die aufgenommene Aktivität zu erhalten. Das ist relativ leicht, wenn, wie bei  $\gamma$ -strahlenden Radionukliden, eine Direktmessung vorgenommen werden kann. Indirekte Messungen über die Ausscheidung haben hingegen den Nachteil, daß vom Meßwert über die Ausscheidungsfunktion auf die inkorporierte Aktivität geschlossen werden muß. Diese Ausscheidungsfunktionen sind aber beachtlichen individuellen Schwankungen unterworfen und sind überhaupt erst einige Tage nach einer Inkorporation gültig, können also unmittelbar nach einem Zwischenfall nur wenig Information liefern.

Eine Direktmessung macht bei Plutonium jedoch deshalb Schwierigkeiten, weil nur bei einem sehr kleinen Bruchteil aller Kernzerfälle  $\gamma$ -Strahlung ausgesandt wird. Was erreicht werden kann, geht aus den physikalischen Daten der Plutoniumisotope hervor.

Von den fünf wichtigen Radioisotopen des Plutoniums sind vier —  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  —  $\alpha$ -Strahler, während das  $^{241}\text{Pu}$  von 0,003%  $\alpha$ -Zerfällen abgesehen, ein  $\beta$ -Strahler ist. Ausführliche Werte sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

In der Praxis hat man es in der Regel mit  $^{239}\text{Pu}$  zu tun, das mit den anderen Pu-Isotopen „verunreinigt“ ist. Dieses Nuklid geht in einigen Prozent der Fälle über einen angeregten Zustand in  $^{235}\text{U}$  über, wobei in etwa 4% aller  $\alpha$ -Zerfälle L-Röntgenstrahlung der Energien zwischen 14 und 20 keV entsteht. Diese Strahlung kann zum direkten Inkorporationsnachweis Verwendung finden.

Wird Plutonium inhaliert, so ist damit zu rechnen, daß bis zu 10% der inhalierten Menge im Laufe der Zeit in das kritische Organ, also das Skelett, gelangen. Wie aus Tabelle 1 zu ersehen, ist im

kritischen Organ eine Aktivität von höchstens 40 nCi zugelassen. Eine direkte Meßmethode muß deshalb mindestens 400 nCi  $^{239}\text{Pu}$  in der Lunge mit Sicherheit erfassen können.

Wenn Plutonium in Wunden ausgemessen werden soll, muß vom Meßgerät gefordert werden, daß es eine punktförmige Aktivität von 1 nCi  $^{239}\text{Pu}$  noch nachweisen kann.

### 2. in-vivo-Messung von Plutonium

#### 2.1. Prinzipielle Meßmöglichkeiten

Der in-vivo-Nachweis von inkorporiertem  $^{239}\text{Pu}$  ist über die  $\gamma$ -Linien bei 100, 124 und 384 keV, die zu einigen 10<sup>-3</sup>% der  $\alpha$ -Zerfälle ausgesandt werden, mit den gebräuchlichen Body-Counter-Anlagen prinzipiell möglich. Die Nachweisempfindlichkeit liegt jedoch infolge des kleinen Emissionsfaktors bei einigen 10  $\mu\text{Ci}$ , so daß diese Meßmethode nur für sehr grobe Schnellmessungen nach schweren Unfällen brauchbar erscheint.

Die Ausnutzung der weichen Röntgenstrahlung verspricht eine wesentlich gesteigerte Meßempfindlichkeit. Sie wird allerdings erkauft mit dem Nachteil, daß infolge der hohen Absorption dieser Strahlung im Körper selbst nur nahe der Oberfläche liegende Schichten mit genügender Ausbeute und vor allem mit einem einigermaßen bekannten Kalibrierfaktor zur Messung beitragen. In der Praxis beschränkt sich diese Methode daher auf die Erfassung des Lungendepots von Plutonium nach Inhalation. Szintillationsdetektoren sind in Normalausführung zum Nachweis unbrauchbar. Man benötigt Sonderanfertigungen mit Berylliumfenstern zur Herabsetzung der Strahlungsabsorption beim Eintritt in den Kristall und Kristalldicken von nur einigen Millimetern zur Verringerung des Nulleffektes [2]. Moderne Proportionalzähler sind jedoch vor allem wenn, wie in diesem Falle, strahlungsempfindliche Flächen von einigen 100 cm<sup>2</sup> gefordert werden, den NaJ(Tl)-Detektoren in vieler Hinsicht überlegen.

Eine weitere Möglichkeit zum Pu-Nachweis bietet sich über die Messung des so gut wie immer, wenn auch in wechselnder Konzentration, vorhandenen  $^{241}\text{Am}$ -Anteiles. Die von diesem

Tabelle 1. Eigenschaften der Plutoniumisotope [1]

Isotop	Emission		Energie [MeV]	Biologische Halbwertszeit [Tage] (Knochen)	Effektive Halbwertszeit [Tage] (Knochen)	Spez. Aktivität [Ci/g]	Neutronen/ g · sec, durch spontane Spaltung	Strahlenschutzrichtwert	
	Art	Prozent pro Zerfall						Luft für 40 Stunden-woche [ $\mu$ Ci/cm <sup>3</sup> ]	Gesamtkörper [ $\mu$ Ci] (Knochen)
238	Alpha	100	5,49	$7,3 \cdot 10^4$	$2,3 \cdot 10^4$	17,4	3420	$2 \cdot 10^{-12}$	0,04
	Gamma	$10^{-3}$	0,15						
	Gamma	$8 \cdot 10^{-3}$	0,10						
	Gamma	$3,8 \cdot 10^{-3}$	0,044						
	L-Röntgenstrahlung	13	0,017						
239	Alpha	100	5,14	$7,3 \cdot 10^4$	$7,2 \cdot 10^4$	0,062	0,03	$2 \cdot 10^{-12}$	0,04
	Gamma	$2 \cdot 10^{-3}$	0,039						
	Gamma	$7 \cdot 10^{-3}$	0,053						
	Gamma	$5,5 \cdot 10^{-3}$	0,100						
	Gamma	$2,5 \cdot 10^{-3}$	0,124						
	Gamma	$1,5 \cdot 10^{-3}$	0,384						
	L-Röntgenstrahlung	1,4 2,1 0,4	0,014 0,017 0,020						
240	Alpha	76	5,162	$7,3 \cdot 10^4$	$7,1 \cdot 10^4$	0,23	1380	$2 \cdot 10^{-12}$	0,04
	Alpha	24	5,118						
	Gamma	$10^{-2}$	0,044						
	L-Röntgenstrahlung	10	0,017						
241	Alpha	$3 \cdot 10^{-3}$	4,9	$7,3 \cdot 10^4$	$4,5 \cdot 10^3$	111,5		$9 \cdot 10^{-11}$	0,9
	Beta	99,997	0,02						
	Gamma	$2 \cdot 10^{-4}$	0,145						
	Gamma	10	0,10						
242	Alpha	76	4,89	$7,3 \cdot 10^4$	$7,3 \cdot 10^4$	0,004	2300	$2 \cdot 10^{-12}$	0,05
	Alpha	24	4,86						
	Gamma	$10^{-2}$	0,045						
	L-Röntgenstrahlung	10	0,017						

Radionuklid emittierte 59 keV-Strahlung kann mit konventionellen Body-Counter-Detektoren je nach der Dicke der Eintrittsfenster manchmal, mit speziellen dünnfenstrigen Ausführungen immer erfaßt werden. Proportionalzähler sind ihrer geringen Absorption wegen in diesem Energiebereich nicht brauchbar. <sup>241</sup>Am sendet außerdem eine Röntgenstrahlung im 17 keV-Bereich aus, die bei den <sup>239</sup>Pu-Messungen über die weiche Röntgenstrahlung mitgemessen wird.

Während in den Vereinigten Staaten [3, 4] und auch in der UdSSR [5] im wesentlichen zur in-vivo-Pu-Messung Szintillationszähler vorgezogen werden, haben sich in Europa die großflächigen Proportionalzähler durchgesetzt; Schwerpunkte der Entwicklung sind Karlsruhe und Harwell. Für die Einführung des Szintillationszählers sprach, daß er keiner besonderen Entwicklung bedurfte. Die Herstellung, Handhabung und das Meßprinzip waren weitgehend bekannt, so daß im Einsatz keine Anfangsschwierigkeiten zu überwinden waren. Seine Anwendung bietet den Vorteil, Röntgen- und  $\gamma$ -Quanten aller vorkommenden Energien gleichzeitig messen zu können und somit je nach Fall und vorliegendem Nuklidgemisch die eine oder andere Information bevorzugt auszunutzen. Aber eben diese meßtechnische Beweglichkeit verhindert eine Optimierung der Empfindlichkeit für den Spezialfall.

Der Proportionalzähler dagegen wurde von uns für die Karlsruher Anlage gewählt, weil er infolge seines außerordentlich niedrigen Nulleffektes trotz vergleichsweise geringer Absorptionswahrscheinlichkeit für die weiche Röntgenstrahlung gegenüber dem Szintillationszähler eine günstigere Nachweisempfindlichkeit aufweist, weil er infolge seiner großen empfindlichen Fläche die beste überhaupt erreichbare Gleichmäßigkeit der Anzeige unabhängig von der Verteilung des Plutoniums in der Lunge ergibt und weil er infolge seines guten energetischen Auflösungsvermögens die einzelnen Röntgenlinien noch trennen kann und

damit bei größeren Kontaminationen sogar aus der verschiedenen Absorption der drei Linien die mittlere Tiefe des eingelagerten Plutoniums abzuschätzen erlaubt [6].

### 2.2 Stand der Detektorentwicklung bei großflächigen Proportionalzählern

Von Taylor ist 1962 ein zylindrischer Zähler mit einem zentralen Anodendraht angegeben worden [7]. Neuerdings hat Ramsden einen flachen Mehrdrahtzähler mit einer Fensterfläche von 6,5" × 6,5" entwickelt [8]. Als Zählgas dient Xenon mit 10% Methanzusatz, das vor der Anwendung gereinigt werden muß. Ein ähnlicher Zähler mit im Kreislauf gereinigtem Xenon als Zählgas ist von Lansiaart gebaut worden [6].

In Karlsruhe werden Zähler mit Fensterflächen von 15 cm × 30 cm benutzt, die schon seit 1961 mit einer Doppelantikoinzidenz versehen sind [9, 10]. Dadurch kann ein besonders niedriger Nulleffekt erreicht und der störende Einfluß des <sup>40</sup>K- und <sup>137</sup>Cs-Gehaltes der auszumessenden Person weitgehend ausgeschaltet werden. Auch der Zähler in Harwell ist neuerdings mit einer solchen Antikoinzidenzanordnung vor dem Meßraum ausgerüstet [11], wodurch der Nulleffekt im Energieband von 10 bis 24 keV um den Faktor 7 auf 7,2 ipm reduziert wurde. Dieser Wert stimmt mit dem in Karlsruhe gemessenen Faktor von 6,5 [10] ausgezeichnet überein. Tyree in Rocky Flats hat das gleiche Prinzip übernommen [12].

Um die Schwierigkeiten der Gasreinigung zu umgehen, wird immer häufiger trotz der geringfügig schlechteren Absorption für die Röntgenstrahlung als Zählgas Argon mit 10% Methan gewählt.

Die wichtigsten Eigenschaften der bisher publizierten Zählordnungen sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2. Zusammenstellung von Proportionalzählern zur in-vivo-Plutoniumbestimmung

Autor	Taylor [7]	Lansart [6]	Ehrét [10]	Ramsden [8]	Tyree [12]	Taylor [11]
Jahr	1962	1964	1964	1965	1966	1966
Zählgas	A/CH <sub>4</sub>	Xe/CH <sub>4</sub> (2 at)	A/CH <sub>4</sub>	Xe/CH <sub>4</sub>	A/CH <sub>4</sub>	A/CH <sub>4</sub>
Fensterfläche (empf. Fläche) [cm <sup>2</sup> ]	150	250	2 × 450	270 (60)	540	930 (800)
Fensterstärke und Material	1,5 mm Lucite, rund	1 mm Be, rund	0,9 mg/cm <sup>2</sup> Plastik, rechteckig	1 mm Perspex, quadratisch	25 μm Mylar, rechteckig	25 μm Mylar
Antikoinzidenz vor Meßraum	nein	nein	ja	nein	ja	ja
Nulleffekt bei üblicher Abschirmung — Energiebereich	10 bis 22,5 keV	10,5 bis 22,5 keV	10,5 bis 22,5 keV	10 bis 25 keV	16,3 bis 17,5 keV	10 bis 24 keV
Imp/min/Imp/min/100 cm <sup>2</sup>	2,5/1,7	8/3,2	4/0,45	3,9/6,5	0,65/0,12	7,2/0,9
Energieauflösung unter Betriebsbedingungen bei 13 keV	15 %	15 %	13 %	16 %	13 %	15 %
Geschätzte nachweisbare Pu-Aktivität nCi Pu/min Meßzeit Kalibrierung	55/100 <sup>235</sup> U in vivo	20/60 ausgedehnte Quelle hinter 25 mm Plexiglas	12/30 Leiche	30/50 Phantom	30/40 25 mm Absorber (gew. äquival.)	16/? Absorber verschiedener Dicke

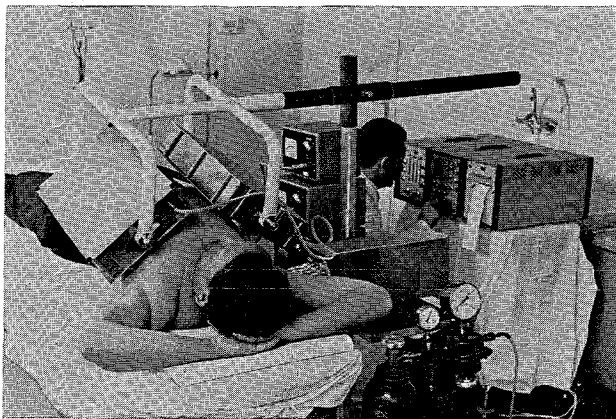


Abbildung 1. Pu-Lungenzähler, alte Anordnung mit hängendem Detektor

Derartige großflächige Proportionalzähler zur Plutoniumbestimmung haben einen Entwicklungsstand erreicht, der auch die industrielle Herstellung und den Vertrieb gestattet.

Realistische Kalibrierungen unter Bedingungen, die so gut wie möglich denen nach Inhalation von Plutonium entsprechen, sind in [10] und [12] beschrieben. Weitere Methoden zur Kalibrierung werden in [7] diskutiert.

2.3 Der Karlsruher Plutonium-Lungenzähler

2.31 Technische Ausführung. Eine erste labormäßige Ausführung des Zählers, die bis auf den Vielkanalanalysator einschließlich der Elektronik [13] im Eigenbau hergestellt worden war, ist in [10] beschrieben. Bei diesem Modell waren die beiden Detektoren oberhalb der Brust der liegenden auszumessenden Person angebracht (Abbildung 1). Eine solche Anordnung führt jedoch zu ziemlichen mechanischen Problemen, da die schweren Zähler erstens beweglich und zweitens so sicher aufgehängt werden müssen, daß sie den darunterliegenden Patienten in keiner Weise gefährden können. Bei der inzwischen in Gebrauch befindlichen kommerziellen Ausführung (Hersteller: Laboratorium Prof. Berthold, Wildbad) konnte trotz zusätzlicher Abschirmung der Zähler mit 6 mm Blei dieses Konstruktionsproblem zufrieden-

stellend gelöst werden. Abbildung 2 zeigt das Schema der Impulsverarbeitung. Die Impulse der beiden Detektoren können nach der Energieanalyse durch je einen Einkanalanalysator wahlweise summiert oder getrennt registriert werden, um gegebenenfalls die Aktivitäten in den beiden Lungenflügeln zu unterscheiden. Abbildung 3 gibt das mit einer punktförmigen Pu-Quelle von 1 μCi in Kontakt mit dem Detektorfenster aufgenommene Spektrum wieder.

2.32 Nachweisempfindlichkeit für <sup>239</sup>Pu. Der Nulleffekt beider Detektoren zusammen beträgt in der Stahlkammer (15 cm Fe-Abschirmung + 0,6 cm Blei am Zähler selbst) bei ungedecktem, nach oben gerichtetem Zählerfenster 1,6 Imp/min. Ein mit destilliertem Wasser gefülltes Nullphantom verändert den Nulleffekt nicht meßbar. — Die Einstellung des Energiekanals wurde auf eine möglichst niedere Nachweisgrenze optimiert. Als untere Nachweisgrenze wird die zweifache mittlere Schwankungsbreite des Nulleffektes angegeben.

$$\text{Nachweisgrenze} = \frac{2}{E} \sqrt{\frac{N_0}{t}} \quad [\text{nCi}],$$

wobei N<sub>0</sub> die Nulleffektsrate [Imp/min], t die Meßzeit [min] und E der Eichfaktor [Imp/nCi] bedeuten. Die optimale Einstellung liegt bei einem Meßbereich von 11,7 bis 20,7 keV. Dabei beträgt die Nachweisgrenze für eine punktförmige <sup>239</sup>Pu-Quelle am Zählerfenster 0,085 nCi bei 100 min Meßzeit. Das Minimum der Nachweisgrenze ist jedoch keineswegs besonders ausgeprägt, so daß es auf die genaue Kanalbreite gar nicht sehr ankommt. Frühere in [10] ausführlich beschriebene Kalibrierungsversuche unter realistischen Versuchsbedingungen haben gezeigt, daß die

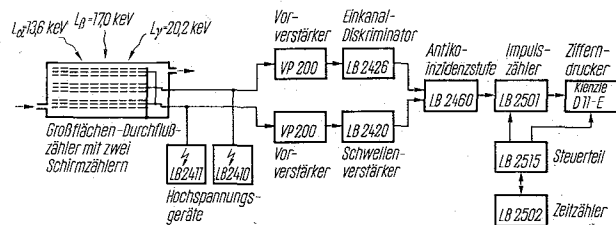


Abbildung 2. Plutonium-Lungenzähler (Blockschaltbild)

zulässige Menge von 40 nCi  $^{239}\text{Pu}$ , wenn sie sich gleichmäßig verteilt in den beiden Lungenflügeln befindet, in einem Zähler des vorliegenden Typs für beide Detektoren summiert eine Impulsrate von 2,2 Imp/min erwarten läßt. Bei einer Meßzeit von 30 min sollten sich daher rund 10 nCi noch mit 95% Vertrauensgrenze nachweisen lassen. Bei einer auf Pu-Inkorporation verdächtigen Person, deren Meßimpulsrate an der oberen 2- $\sigma$ -Grenze liegt oder diese gerade überschreitet, wird man zunächst die Meßzeit verlängern und außerdem durch Ausscheidungsmessungen den Verdacht der Inkorporation zu erhärten versuchen.

**2.33 Empfindlichkeit für Störstrahler.** Versuche haben gezeigt, daß auch andere Strahler im  $^{239}\text{Pu}$ -Kanal erfaßt werden, die eine niederenergetische Röntgenstrahlung aussenden. Hochenergetische  $\gamma$ -Strahlung stört erst bei relativ hohen Aktivitäten. In Tabelle 3 sind die Eichfaktoren und Nachweisgrenzen für verschiedene punktförmige Strahler aufgeführt (Ausnahme: Kalium-40, als Kaliumquelle wurden 100 g KCl verwendet). Aus der Tabelle ist ersichtlich, daß  $^{239}\text{Pu}$  bei Anwesenheit bestimmter anderer  $\alpha$ -Strahler nicht spezifisch gemessen werden kann. Dabei ist bemerkenswert, daß  $^{241}\text{Am}$ , bezogen auf die Aktivität, um den Faktor 5 empfindlicher erfaßt wird. Bei  $^{239}\text{Pu}$ -Quellen, die einen Anteil von  $^{241}\text{Am}$  haben, muß deshalb gegebenenfalls der Einfluß von  $^{241}\text{Am}$  gesondert bestimmt werden. Dazu kann man die 59 keV- $\gamma$ -Linie benutzen (Tabelle 4). Für  $^{137}\text{Cs}$  liegt die untere Nachweisgrenze bei 23,5 nCi. Deshalb stört die gegenwärtig im Mittel noch vorhandene Aktivität von  $^{137}\text{Cs}$  im menschlichen Körper die  $^{239}\text{Pu}$ -Messung im Lungenzähler nicht. Die Kalium-Eichung mittels Phantom ergab für beide Detektoren summiert einen Eichfaktor von 0,06 (Imp/min)/1 gK im kg des Phantoms. Der menschliche Körper enthält durchschnittlich 2,5 gK/kg. Das bedeutet, daß durch den Kaliumgehalt der auszumessenden Person der Nulleffekt um rund 10% erhöht wird. Bei genauen Messungen muß das berücksichtigt und der um den Kaliumwert korrigierte Nulleffekt eingesetzt werden.

#### 2.4 Fortschritte beim Szintillationszähler

Mit Hilfe einer interessanten detektortechnischen Neuentwicklung, die allerdings mit einigem elektronischen Aufwand verbunden ist, konnte in der letzten Zeit die Empfindlichkeit des Szintillationszählers bei der Plutonium-in-vivo-Messung erheblich verbessert werden [23].

Ein dünner CsJ(Tl)-Kristall von 20 cm Durchmesser und 1 mm Dicke ist auf einen 5 cm dicken NaJ(Tl)/Kristall gleichen Durchmessers montiert und mit diesem optisch gekoppelt. Das System wird von einem einzigen Photomultiplier „gesehen“. Die Lichtblitze in beiden Szintillationssubstanzen haben verschiedene Abklingzeiten [NaJ(Tl) 0,25  $\mu\text{s}$  und CsJ(Tl) 1,1  $\mu\text{s}$ ], was zur elektronischen Trennung der Impulse ausgenutzt wird. Durch die folgende Antikoinzidenzschaltung wird der Nulleffekt im Energiebereich von 12 bis 200 keV um wenigstens 60% und das Compton-Kontinuum von  $^{137}\text{Cs}$  um 70% reduziert.

Tabelle 3. Eichfaktoren pro Detektor

Eichfaktoren pro Detektor	
	[Imp/min · nCi]
$^{239}\text{Pu}$	2,09
$^{233}\text{U}$	1,92
$^{235}\text{U}$	3,53
$^{241}\text{Am}$	11,10

Tabelle 4.  $\gamma$ -Quanten von  $^{241}\text{Am}$  [25]

Energie [keV]	Quanten/Zerfall
14,0	$1,35 \cdot 10^{-1}$
17,8	$1,84 \cdot 10^{-1}$
59,6	$3,59 \cdot 10^{-1}$

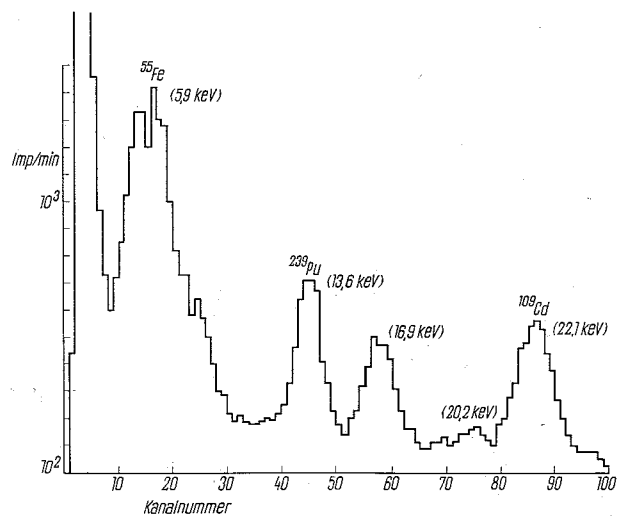


Abbildung 3. Pu-Lungenzähler mit 100 Kanalanalysator

Die — allerdings recht unrealistische — Kalibrierung mit einem Wasserphantom ergab bei Ausnutzung des Energiebereiches von etwa 10 bis 70 keV für 30 min Meßzeit in der Stahlkammer die nominelle Nachweisgrenze von 1,4 nCi  $^{239}\text{Pu}$ , verunreinigt mit 100 ppm (oder  $7,2 \cdot 10^{-3}$  nCi)  $^{241}\text{Am}$ . Die entsprechende Nachweisgrenze außerhalb des Stahlraumes war 6,8 nCi. Bei Messung allein im Bereich des 17-keV-Peaks lauten die beiden Werte 2,1 bzw. 5,3 nCi.

Selbst wenn sich die Nachweisgrenzen bei verbesserter Kalibrierung mit einem Alderson-Lungenphantom noch verschlechtern, so erscheint mit dieser Meßanordnung doch ein erheblicher Fortschritt gegenüber den bisherigen Anordnungen dünner Kristalle gegeben zu sein.

Der Vorteil des Szintillationszählers ist vor allem die Möglichkeit, mit einer einzigen Messung gleichzeitig den  $^{241}\text{Am}$ -Anteil oder auch andere Transurane mit weicher  $\gamma$ -Strahlung bestimmen zu können.

Als Nachteil bleibt jedoch auch weiterhin die starke Abhängigkeit der Nulleffektrate vom Körperbau und  $^{40}\text{K}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}$ -Gehalt der auszumessenden Person bestehen, die beim Proportionalzähler mit Doppelantikoinzidenz nicht vorhanden ist. Durch ihren Einfluß wird die untere Nachweisgrenze des Szintillationszählers in der Praxis oft sehr verschlechtert.

Die günstigste Anordnung zur empfindlichen in-vivo-Bestimmung von inhaliertem  $^{239}\text{Pu}$  dürfte zur Zeit immer noch der großflächige Proportionalzähler sein, nach Möglichkeit ergänzt durch einen einfachen dünnen CsJ(Tl)-Kristall von etwa 1 mm Stärke und 7 bis 10 cm Durchmesser zur zusätzlichen Erfassung der  $\gamma$ -Strahlung im 60 keV-Bereich.

### 3. Messung von Plutonium in Wunden

#### 3.1 Prinzipielle Meßmöglichkeiten

Zur Messung von Plutonium in Wunden ist die Erfassung der  $\alpha$ -Aktivität nicht brauchbar, da die Reichweite der  $\alpha$ -Strahlung im Gewebe nur etwa 0,05 mm beträgt. Selbst wenn man über einen geeigneten Detektor verfügte, der in unmittelbarem Kontakt mit der Wunde gebracht werden könnte, würde man immer nur die Aktivität in einer äußerst dünnen Gewebeschicht messen und daraus keinesfalls eine Aussage über die Gesamtktivität in der Wunde herleiten können. Deshalb wird zur Wundmessung ausschließlich die weiche Röntgenstrahlung benutzt. Das schließt nicht aus, daß man  $\alpha$ -Detektoren zum Nachweis der Hautkontamination benötigt, und diese damit auch von der Aktivität in der Wunde am einfachsten unterscheiden kann.

Als Detektoren zum Nachweis der Röntgenstrahlung finden üblicherweise dünne NaJ(Tl)-Kristalle Verwendung [14, 15], da es nicht auf große Meßflächen ankommt und deshalb der Haupt-

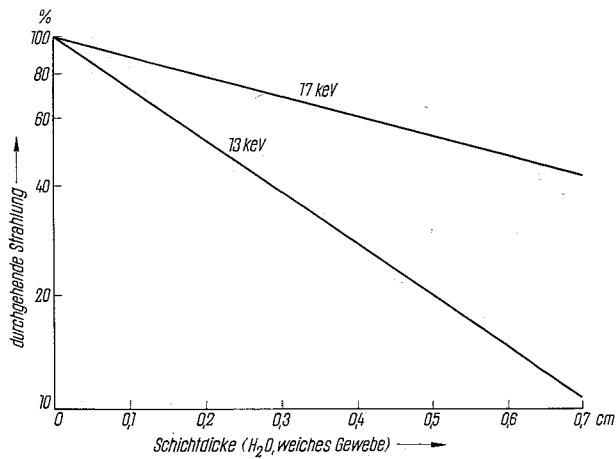


Abbildung 4. Absorption der Pu-Röntgenstrahlung in weichem Gewebe

vorteil des Proportionalzählers, die praktisch beliebig vergrößerten Abmessungen bei extrem niedrigem Nulleffekt, keine Rolle spielt. Außerdem ist hohe Absorption im Detektor zur Verkürzung der Meßzeiten erwünscht, da die Messung bei Verletzten immer möglichst rasch vor sich gehen muß. Für spezielle Aufgabenstellungen sind jedoch auch Proportionalzähler vorgeschlagen worden [16, 17].

Den Arzt interessieren dabei als Resultat der Messung vor allem zwei Angaben: erstens die Höhe der Aktivität in der Wunde und zweitens die Verteilung einer ausgedehnten bzw. die genaue Lage einer punktförmigen Kontamination in und außerhalb der Wunde.

**3.11 Messung der Höhe der Aktivität.** Die Höhe der Aktivität ist bei geeigneter Kalibrierung mit jedem röntgenempfindlichen Detektor relativ einfach feststellbar, wenn dabei drei Einflüsse beachtet werden, die sich verfälschend auf das Meßergebnis auswirken: — 1. *Die Absorption im Gewebe selbst.* Je nach der Lagetiefe der Aktivität im Gewebe muß die Absorption berücksichtigt werden. Die Korrekturfaktoren für die beiden hauptsächlichsten Strahlungsenergien sind in Abbildung 4 wiedergegeben [18]. Sie können exakt nur angewendet werden, wenn die Aktivität punktförmig ist und man ihre Lage kennt, sei es aufgrund anderweitiger Messungen, sei es aufgrund des unmittelbaren Augenscheins (Wundtiefe). Andernfalls wird man, z. B. für Fingerwunden, etwa einen mittleren Faktor 3 ansetzen müssen. Da die Absorption im Knochen sehr viel höher ist als im weichen Gewebe, muß besonders darauf geachtet werden, daß sich zwischen Aktivität und Detektor keine Knochensubstanz befindet. — 2. *Die Absorption im Plutonium.* Die Eigenabsorption der weichen Röntgenstrahlung im Plutonium ist erheblich. Der notwendige Korrekturfaktor für ein einzelnes kugelförmiges Teilchen bestimmter Aktivität (und damit über die spezifische Aktivität auch bestimmten Durchmessers) kann der Abbildung 5 entnommen werden [19]. Bei einer Aktivität des Teilchens von 10 nCi muß bereits mit dem Faktor 2, bei 1  $\mu$ Ci mit dem Faktor 10 korrigiert werden. Man wird daher versuchen, auch Angaben über Verteilung und Korngröße des Plutoniums in der Wunde zu erhalten und bei der Aktivitätsbestimmung mit heranzuziehen. — 3. *Der Einfluß von Störstrahlung.* Die im Energiebereich von etwa 10 bis 25 keV gemessene Strahlung kann außer von  $^{239}\text{Pu}$  auch von zahlreichen anderen Isotopen herkommen. So ergibt zum Beispiel  $^{241}\text{Am}$  bei gleicher Aktivität etwa die achtfache Impulsrate im Zähler wie  $^{239}\text{Pu}$ . Bei gleichzeitiger Kontamination von Wunden mit Plutonium und Americium muß deshalb in Grenzfällen der  $^{241}\text{Am}$ -Anteil über die 59 keV- $\gamma$ -Linie besonders bestimmt werden. Für solche Fälle ist es zweckmäßig, einen Zweikanal diskriminator oder Vielkanalanalysator zur raschen Erfassung beider Nuklide zu verwenden. Umgekehrt kann bei bekanntem  $^{241}\text{Am}$ -Anteil dessen  $\gamma$ -Strahlung wegen der geringeren Absorption zu einer genaueren Aktivitätsbestimmung herangezogen werden [24]. — In Tabelle 5 sind die relativen Zählraten bei gleichen Aktivitäten im Vergleich zu  $^{239}\text{Pu}$  für verschiedene Nuklide zusammengestellt [20]. Diese Werte können sich je nach Bauweise des Detektors und Art der Quelle etwas ändern, geben aber im großen und ganzen ein gutes Bild über die Einflüsse der verschiedenen anderen Strah-

Tabelle 5. Quantenausbeute und Eichfaktoren, mit Flächenquellen von 1 cm Durchmesser bei offenem Szintillatorfenster, im Energiebereich von 11 bis 23 keV gemessen. Die  $\alpha$ -Aktivität wurde mit einem Halbleiterdetektor bestimmt.

	Quantenausbeute in % (Quanten im 11 bis 23 keV-Kanal) 100 $\alpha$ -Zerfälle	Eichfaktoren [Imp/min · nCi] im Energiebereich von 11 bis 23 keV
$^{239}\text{Pu}$	5	29,9
$^{235}\text{U}$	11	62,4
$^{239}\text{Pu}$	4	23,0
$^{241}\text{Am}$	31	181
$^{244}\text{Cm}$	8	45,6

ler und die Messung der Pu-Aktivität. In der Praxis treten während der Messung des Verletzten oft gewisse Verständigungsschwierigkeiten zwischen Arzt und Physiker auf. Der Arzt muß die Behandlung schnell durchführen und drängt bei der Messung auf Angabe einer eindeutigen Zahl für den Aktivitätswert; am liebsten wäre es ihm, wenn die Anzeige des Meßgerätes direkt in nCi geeicht wäre. Der Physiker dagegen macht nicht gern eine Aussage, ohne alle Einflußfaktoren zu kennen oder sie mindestens abschätzend berücksichtigt zu haben; er wird daher im allgemeinen nicht mit einer einzigen angezeigten Impulsrate zufrieden sein, sondern die Ergebnisse weiterer und zusätzlicher Messungen abwarten wollen, bevor er sich festlegt. Nur lange praktische Erfahrungen auf beiden Seiten und eine guteingespielte Zusammenarbeit können dazu beitragen, diesen Zwiespalt zu überwinden.

**3.12 Lokalisierung der Aktivität.** Zur Lokalisierung der Aktivität wird üblicherweise mit Blenden verschiedenster Art vor dem Eintrittsfenster des Kristalls gearbeitet. Man wird versuchen, in zwei zueinander senkrechten Richtungen zu messen, um eine Lagebestimmung der Aktivität nicht nur in der Ebene, sondern auch räumlich zu erreichen. Ob dies möglich ist, hängt natürlich von Art und Stelle der Verletzung ab. Eventuell müssen bei dieser Art der Lokalisation Absorptionsänderungen für die verschiedenen Meßstellungen berücksichtigt werden (z. B. Fingernagel, Knochen u. ä.). Eine andere Möglichkeit zur Lokalisierung wäre mit kleinvolumigen Detektoren gegeben, die sich in die Wunde einführen lassen. Bisher existiert jedoch noch keine technisch befriedigende Ausführung einer solchen Sonde. Auch aus den verschiedenen Absorptionsverhältnissen der einzelnen Linien, sei es der Pu-Röntgenlinien untereinander, sei es der Röntgenlinie zu den  $\gamma$ -Linien im 50 keV-Bereich, läßt sich manchmal die Tiefe der Aktivität ermitteln. Dazu benötigt man aber die genaue Kenntnis des Isotopengemisches oder, einfacher, eine Vergleichsmessung

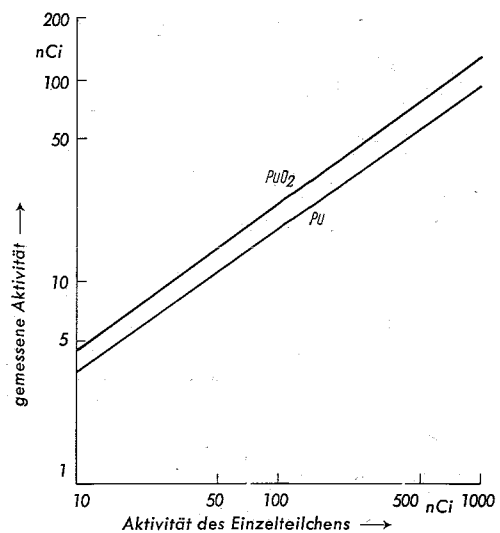


Abbildung 5. Einfluß der Absorption der Röntgenstrahlung in Pu selbst auf die Messung der Aktivität

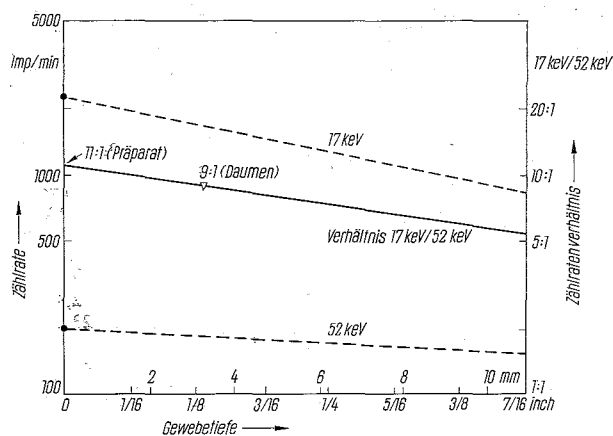


Abbildung 6. Bestimmung der Einlagerungstiefe bei einer Pu-Wundkontamination

mit einer absorptionsfreien Probe gleicher Zusammensetzung (z. B. Wischtest am Unfallort). Abbildung 6 gibt dafür ein Beispiel, das aus der Analyse einer tatsächlich stattgefundenen Wundkontamination stammt [21]. Die relativen Zählraten von zwei Liniengruppen mit Energieschwerpunkten bei 17 und 52 keV, die sich bei der Ausmessung des verletzten Daumens ergaben, wurden mit derjenigen verglichen, die von einem kurz zuvor aus der Wunde ausgeschnittenen Plutoniumpräparat ziemlich hoher Aktivität stammten. Die so erhaltenen Verhältniswerte waren 9:1 für den Daumen und 11:1 für das nichtabsorbierende Präparat. Daraus wurde die Stärke der absorbierenden Gewebeschicht des Daumens zu etwas mehr als 3 mm bestimmt.

### 3.2 Beispiele für verwendete Detektoren

Die in Gebrauch befindlichen Detektoren sind sich überall vom Aufbau her weitgehend ähnlich. Sie bestehen aus NaJ(Tl)-Kristallen von 2,5 cm Durchmesser und 1 bis 8 mm Dicke (die geringen Schichtdicken sind vorzuziehen, da 17 keV-Strahlung bereits in 0,3 mm und selbst die Strahlung im 50 keV-Bereich noch in weniger als 1 mm zu 90% absorbiert wird, doch wird die Präpariertechnik für so dünne Kristalle sehr schwierig). Bei Abschirmungen von einigen cm Blei werden im Energieband von 10 bis 25 keV Nulleffekte von 5 bis 15 Imp/min erreicht. 1 nCi  $^{239}\text{Pu}$  bringt je nach Kollimierung im gleichen Energieband 1 bis 30 Imp/min.

Das Energieauflösungsvermögen reicht bei solchen Kristallen nicht aus, um die 13- und 17 keV- $^{239}\text{Pu}$ -Linie zu trennen.

Eine Schwierigkeit bei der praktischen Anwendung der Detektoren liegt im hohen Gewicht, verursacht durch die notwendige Abschirmung, und damit in der Unhandlichkeit gerade zur Lokalisierung. Man findet daher häufig mechanische Aufhängungen. Auf jeden Fall sollte ein Herausnehmen des eigentlichen Detektors aus der Abschirmung leicht möglich sein, um zumindest für den Fall höherer Kontamination, wenn der Nulleffekt keine große Rolle mehr spielt, die Handhabung zu erleichtern.

Zur genauen Lokalisierung werden manchmal Lichtmarkierungen verwendet; man stellt dann den Detektor so nah wie möglich an der Wunde auf die maximale Zählrate ein, hebt ihn dann mit Hilfe einer mechanischen Führung ab und erkennt nun durch einen Lichtfleck den Ort der erhöhten Strahlungsemission auf der Hautoberfläche des Patienten [18].

Für die rasche Ausnutzung aller gegebenen Informationen ist es vorteilhaft, die Elektronik sowohl für Analoganzeige (Ratemeter) als auch für digitale Anzeige (Zählwerk) und für Höranzeige (Lautsprecher) zuzulegen. Bei niederen Aktivitäten ist Einzelimpulszählung erforderlich, bei der Lokalisierung ist die akustische Anzeige von großem Vorteil.

Die in Karlsruhe verwendete Meßanordnung berücksichtigt diese Forderungen an die Elektronik [22]. Der Detektor ist jedoch zur Zeit noch in einer festen Abschirmung eingebaut, die zwar einen sehr niederen Nulleffekt gewährleistet, aber durch ihre Unbeweg-

lichkeit im praktischen Einsatz nicht voll befriedigt. Es wird daher zur Zeit ein fahrbares Zählgerät mit beweglicher Detektoraufhängung zur Anwendung unmittelbar am Operationstisch beschafft.

Falls der Detektor mit der Wunde in Berührung kommen kann, wie das bei der Lokalisation fast unvermeidbar der Fall ist, erhebt sich die Forderung nach Sterilisation des Gerätes. Nur in Ausnahmefällen wird sich der Detektor auf die notwendige Temperatur erhitzen lassen, obwohl auch hierzu schon Entwicklungen unternommen worden sind [17]. Man muß sich in der Regel mit sterilen Folien helfen, die vor Gebrauch über den Detektor gezogen werden können.

### 3.3 Entwicklungstendenzen

Mit den bekannten und vorhandenen Wundzählern ist niemand ganz zufrieden. Man wünscht sie handlicher, empfindlicher und, zur Lokalisation innerhalb der Wunde, um ein beträchtliches kleiner als bisher. Die Entwicklung verfolgt zwei Richtungen.

Einerseits wird versucht, auch hier statt der Szintillationszähler Proportionalzähler zum Einsatz zu bringen. Dazu müßte es gelingen, durch Druckerhöhung im Zähler den Absorptionswirkungsgrad zu verbessern. Die Vorteile wären erheblich geringerer Nulleffekt trotz geringerer Abschirmung und damit kleineres Gewicht trotz gleicher oder sogar besserer Empfindlichkeit und ein gesteigertes Energieauflösungsvermögen zur Trennung der einzelnen Röntgenlinien. Ansätze hierzu sind schon vorhanden [17], weitere Versuche und Entwicklungen sind im Gange.

Andererseits bemüht man sich, kleinere Kristalle von höchstens einigen Millimetern Durchmesser an die Spitze von bevorzugt biegsamen Lichtleitern zu montieren, um damit möglichst nahe an die Aktivität in einer Wunde heranzukommen. Im Prinzip ist so etwas durchaus möglich, Erfahrungen über die praktische Bewahrung stehen aber noch aus.

Es ist zu erwarten, daß auch die Entwicklung der Halbleiterdetektoren in absehbarer Zeit soweit vorangeschritten sein wird, daß Miniaturdetektoren kleinsten Volumens zur Messung von Pu-Röntgenstrahlung in Wunden benutzbar werden. Sie dürften dann eine wertvolle Ergänzung der größeren Kristalldetektoren darstellen.

### Literatur

- [1] Kiefer H. und Maushart R.: „Strahlenschutzmeßtechnik“, Verlag G. Braun, Karlsruhe 1959, S. 324
- [2] Kiefer H. und Maushart R.: „Strahlenschutzmeßtechnik“, Verlag G. Braun, Karlsruhe 1959, S. 406 ff.
- [3] Roesch W. C. und Palmer H. E.: „Detection of Plutonium in vivo by Whole Body Counting“, Health Physics 8, 773 (1962)
- [4] Boss M. R. und Mann R. J.: „Whole Body Evaluations of  $^{239}\text{Pu}$ “, 10th Annual Meeting of the Health Physics Society, Los Angeles 1965 p. 77
- [5] Erochin R. A. u. a.: „Die Anwendung der  $\gamma$ -Spektrometrie zur Bestimmung von Pu im lebenden Organismus“, Medizinskaja Radiologica, Nov. 1965, S. 37
- [6] Lansiant A. und Morucci J.-P.: „Nouveau compteur proportionnel destiné à la détection in vivo de traces de Pu dans les poumons“ in „Assessment of Radioactivity in Man“, IAEA, Wien 1964
- [7] Taylor B. T. und Rundo J.: „A Progress Report on the Measurement of Pu in vivo“, SERE-R 4155, 1962
- [8] Ramsden D.: „A Multiwire Proportional Counter for the Detection of Pu $^{239}$  in vivo“, AEEW-M 526, 1965
- [9] Fessler H., Kiefer H. und Maushart R.: „Zur Messung von Quantenstrahlung im Energiebereich von 3 bis 30 keV mit großflächigen Proportionalzählrohren“, Atompraxis 7, 401 (1961)
- [10] Ehret R., Kiefer H., Maushart R. und Möhrle G.: „Performance of an Arrangement of Several Large-area Proportional Counters for the Assessment of  $^{239}\text{Pu}$  Lung Burdens“, IAEA Symposium on Assessment of Radioactive Body Burdens, Heidelberg 1964
- [11] Taylor B. T.: „Measurement of Pu in vivo“, AERE/PR/HPM 9, 25 (1965)
- [12] Tyree W. H.: „A Large-area Gas Proportional Detector for Low Energy Photons“, RFP-637 UC 37, TID 4500, 1966
- [13] Schmitt A.: „Elektronik zur Verbesserung des Pu-Inkorporationsmonitors“, in Externer Bericht der Ges. f. Kernforschung Nr. 20/66-1, 1966, S. 72



- [14] Roesch W. C. und Baum J. W.: „Proceedings of the 2nd Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy“, Vol. 23, Genf 1958, S. 142
- [15] Vernon P. B., Hall P. M. und Poda G. A.: DPSPU 63-30-5, Savannah River Laboratory, 1963
- [16] Kiefer H. und Maushart R.: „Determination of  $^{239}\text{Pu}$  Body Burden Using  $\gamma$ -Spectrometry with Proportional Counters“, Proc. Symp. on Whole Body Counting, IAEA, Wien 1961
- [17] Fessler H., Kiefer H. und Maushart R.: „Detection and Measurement of Activity in Wounds“, Proc. Symp. on Personnel Dosimetry for Radiation Accidents, IAEA, Wien 1965
- [18] Epstein R. J. und Johanson E. W.: „Apparatus for Monitoring  $^{239}\text{Pu}$  in Wounds“, Health Physics 12, 29 (1966)
- [19] Tyler G. R.: „Self-absorption of X-rays by Pu Particles with Special Reference to Pu in Wound Monitoring“, Health Physics 12, 509 (1966)
- [20] Ehret R.: „Zur Messung von Pu in Wunden“, Direct Information 9/66 in Atompraxis 12, Heft 9 (1966)
- [21] Vernon P. B., Hall P. M. und Poda G. A.: „Monitoring Decontamination and Bio-assay of a Pu Contaminated Injury“, Health Physics 12, 1539 (1966)
- [22] Ehret R.: „Aufbau eines Meßplatzes zur Kontaminationskontrolle von verletzten Personen“, in Externer Bericht der Ges. f. Kernforschung Nr. 20/66-1, 1966, S. 55
- [23] Laurer G. R. und Eisenbud M.: „In-vivo Measurement of Nuclides Emitting Soft Penetrating Radiations“, Symp. Diagnosis and Treatm. Depos. Radionucl., Hanford, May 15 to 17, 1967
- [24] Cloutier R. J. und Watson E. W.: „Measuring Pu in Wounds: Advantages of Using the Americium  $\gamma$  Rays“, Health Physics 13, 811 (1967)
- [25] Magnusson L. B.: Phys. Rev. 107, 161 (1957)

Anschrift der Verfasser: Dr. H. Kiefer, Schule für Kerntechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe, 7501 Reaktorstation Leopoldshafen, und Dr. R. Maushart, 754 Neuenbürg/Enz, Albert-Schweitzer-Straße 18

#### Plutonium-Inkorporationsnachweis durch Direktmessung

Es wird ein Überblick über die derzeitigen Möglichkeiten des Pu-Inkorporationsnachweises durch Direktmessung gegeben. Meßmethoden, Nachweisgrenzen und Fehlereinflüsse werden sowohl für die in-vivo-Messung von inhaliertem  $^{239}\text{Pu}$  als auch für dessen Nachweis in Wunden erörtert. Dabei wird besonders auf den Stand der Defektorentwicklung eingegangen und die im Kernforschungszentrum Karlsruhe in Betrieb befindliche Anlage zur Direktmessung des  $^{239}\text{Pu}$ -Gehaltes in der Lunge im einzelnen beschrieben.

#### Demonstration of Plutonium Incorporation by Direct Measurement

The article surveys the present possibilities for demonstrating the incorporation of Pu by direct measurement. Measurement techniques, limits of demonstrability, and influence of errors are discussed, both for "in vivo" measurement of inhaled  $^{239}\text{Pu}$  and for demonstration of its presence in wounds. The present state of detector development is discussed in particular detail, and the setup in operation at the Nuclear Research Center in Karlsruhe for direct measurement of  $^{239}\text{Pu}$  in the lung is closely described.

#### Détection de l'assimilation de plutonium par mesure directe

On donne un aperçu des possibilités actuelles de détection de l'assimilation de Pu par mesure directe. Les méthodes de mesure, les limites de détection et les influences exercées sur les erreurs font l'objet d'un commentaire, qu'il s'agisse de mesure in-vivo de  $^{239}\text{Pu}$  inhalé ou de sa détection dans les blessures. On insiste à cet égard sur le développement actuel des détecteurs, et on donne une description complète du dispositif de mesure directe de la teneur en  $^{239}\text{Pu}$  dans le poumon en fonctionnement dans le centre de recherches nucléaires de Karlsruhe.