309024

IV

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 1. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTOP BUDAPEST

AZ IZOTÓPTECHNIKA 16. ÉVFOLYAMÁNAK TARTALMA

1. szám

Neutronradiográfia..... 5
Medveczky L.

A neutronradiográfia alkalmazásának kifejlesztése és jövője Csehszlovákiában..... 16
Hrdlicka, Z.

A talajok radioaktiv szennyezettsége az ország különböző pontjain..... 21
Török I., Kovács J.

Módositások az IM-1305 tipusu tömegspektrométeren..... 32
Varga Gy., Beczner, K.

Radionuklid generátorok orvosi felhasználásának farmakológiai problémái.. 37
Pál I.

2. szám

Modern irányzatok a szovjet ipari radiográfiában..... 51
Hirling J., Szili S., Fekete Z.

Az izotópok ipari alkalmazása Ausztriában /A Seibersdorfi Kutatóközpont tevékenysége/..... 64
F. Frevert

Szén-14-gyel jelzett herbicidek hatásának és bomlásának vizsgálata szőlőlevélen és algán..... 79
Kovács J., Vincze I., I.Ali Haroun

Környezeti minták γ-spektrometriás mérése és a mérési eredmények számológépes analizise..... 84
Kovács M., Beleznay F.-né, Andrási A., Erdélyvári I.

Mérések a légkör radiokripton tartalmának növekedésére vonatkozóan..... 96
Csongor É.

3. szám

A környezet radioaktivitása ellenőrzésének ujabb szempontjai, különös tekintettel az összes β- és γ-aktivitás mérési módszereire..... 113
Polgár E.

Radioaktiv etalonok készitése az Országos Mérésügyi Hivatalban..... 123
SzokolyiL., Szörényi Á.

A radioaktiv etalonok készitésének néhány kérdése..... 135
Barta T., Jedlovszky R., Szörényi Á.

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok szétválasztása és százalékos eloszlásuk meghatározása..... 149
Gyertyánfy G., Földes J., Kollin É.

A PMB-6 tipusu betatron sugárzásának mérése..... 159
Benkő L.

4. szám

A radioanalitikai módszerek kialakulása..... 179
Szabadváry F.

Az atomtechnika alkalmazása a magyar mezőgazdaságban..... 186
Szalóczy B.

Nukleáris létesitmények környezetellenőrzésének modern módszerei..... 199
Fehér I., Erdélyvári I.

Különféle fehérjék jódizotópokkal való jelzésének problémái..... 209
Kocsár L., Merétey K., Kutas V.

Nagyenergiáju sugárzás alkalmazása oldhatatlan enzimkészitmények előállitásában..... 215
Dobó J.

Harántlyuku kristály alkalmazása áramló folyadék radioaktivitásának mérésére gélszürő technikában..... 223
Ditrói F., Péter F., Lampé L., Lakatos L.

5. szám

A Kőolaj- és Gázipari Izotópalkalmazási Munkabizottság 10 éve..... 233
Vajta L.

Radioizotópok alkalmazása a magyar szénhidrogén-termelésben..... 237
Dallos I.

Nukleáris módszerek térhóditása a mélyfurási geofizikában..... 244
Czeglédi I., Márhoffer J.

Radioaktiv izotópok alkalmazása a kőolajfeldolgozásban..... 252
Vajta L., Bálint T., Péczeli B.

Az autoradiográfia hibaforrásai I. 265
Kozma L., Bartha L.

Sugárvédő hatásu AET fehérjékhez való kötődésének kvantitativ viszonyai. 270
Horváth M.

Sugárvédő AET fehérjék közti kevert diszulfid kötés tiolos hasitásának reakciómechanizmusa..... 275
Horváth M.

Besugárzás hatása fehérje és sugárvédő AET közötti kevert diszulfid kötésre..... 279
Horváth M.

6. szám

Ciklohexán-hexametil-benzol elegy radiolizise..... 291
Roder M.

A gyürüs szerkezet hatása a szénhidrogének radiolizisére..... 297
Földiák G., Cserép Gy., Horváth Zs., Wojnárovits L.

Sugárrezisztens félvezető detektor előállitása és γ-dózisintenzitások mérésére történő alkalmazása..... 307
Osvay M., Tárczy K.

A lud vértérfogatának mérése radioizotópos módszerrel..... 328
Horváth Z., Kardos Zs.

A cisztein sejtanyagcserére kifejtett hatásainak szerepe a sugárrezisztencia fokozódásában
I. E.coli sejtekben kifejtett hatás..... 336
Hernádi F.

7-8. szám

A DIAGNOSZTIKÁBAN ÉS TERÁPIÁBAN ALKALMAZOTT RADIOAKTIV ORVOSI KÉSZITMÉNYEK cimü KGST szimpózium /1973. május 14-18, Szeged/ magyar előadásai

^{125}I-fibrinogén előállitása és biológiai sajátosságai..... 354
Kocsár L., Kutas V., Merétey K., Ligeti J., Krasznai J.

^{125}I-dal jelzett fibrinogén sugárexpoziciójának közelitése..... 357
Farkas Gy., Kutas V., Predmerszky T.

Friss thrombus ^{125}I-fibrinogénnel való lokalizálhatóságáról, elégtelen keringésü szivbetegek vizenyős alsó végtagján..... 364
Horváth M., Ludvigh K., Kocsár L., Kutas V., Horváth M.né, Sárdy J.né

In vitro pajzsmirigymüködés-vizsgálatok..... 370
Földes J., Piroska E., Gesztesi E., Takács J.né

ETR vizsgálatokkal szerzett tapasztalataink..... 375
Hernády T., Mártonffy K., Biró K.

^{131}I-tiroxin és ^{131}I-trijódtironin stabilitásának vizsgálata és a radiolitikus bomlás befolyása egyes diagnosztikus tesztekre..... 378
Reviczky A., Szántó L.

Tapasztalatok a radioimmunoassay módszerek beállitásánál..... 387
Merétey K., Kocsár L., Földes J.

A Gordox jódizotóppal való jelzése és biológiai tulajdonságai..... 391
Kutas V., Kocsár L., Krasznai I., Kelemen Á., Bertók L.

A hyperthyreosis ^{125}I és kombinált radiojód /^{125}I+^{131}I/ terápiájával szerzett tapasztalataink..... 396
Konrády A., Tahy Á., Bánhidi L., Policzer M.

^{113}In^{m}SMAA - tüdőszcintigráfiára alkalmas uj radiofarmakon..... 401
Csetényi J., Szentessyné Számel I., Füzy M., Karika Zs.

Radioaktiv diagnosztikumok radiokémiai tisztaságának dozimetriai jelentősége..... 406
Predmerszky T., Farkas G.

Diagnosztikai jelentőségü radioaktiv fémkomplexek előállitása és analitikai vizsgálata..... 412
Pál I., Jász Á., Kovách A., Kelemen Gy.né

Radioaktiv fémkomplexek farmakológiai vizsgálata..... 418
Pál I., Földes J., Krasznai I.

Glomeruláris filtráció mérése kisérleti állatokban egyinjekciós módszerrel..... 423
Molnár Gy., Stützel M., Szilvási I., Lengyel E.né, Pál I.

Agytumor-szcintigráfia ^{169}Yb-komplexekkel..... 435
Zoltán L., Pál I., Simkovics M.

Összehasonlitó agyszcintigráfiás vizsgálatok radioaktiv indiummal /^{113}In^{m}-EDTA/ és radioaktiv szamáriummal /^{153}Sm-DTPA/ 440
Tarján Gy., Pál I., Karika Zs., Füzy M., Szentessyné Számel I.

^{169}Yb-EDTA vesedinamikai vizsgálata gamma-kamerával..... 446
Molnár Gy., Przedlacki J., Pál I.

^{169}Yb-komplexek alkalmazása ciszternográfiára és myeloszcintigráfiára.. 451
Pál I., Simkovics M., Zoltán L.

Extracelluláris folyadékok vizsgálata radioaktiv fémkomplexekkel..... 456
Pál I., Molnár Gy., Szilvási I.

Radioaktiv szamáriumkomplex /^{153}Sm-EDTA/ a csont szcintigráfiás vizsgálatában..... 460
Karika Zs., Pál I., Tarján Gy., Füzy M., Nyul Tóth P.

Radioaktiv fémkomplexek retenciójának vizsgálata patkányokon..... 465
Máté L., Varga L., Farkas Gy., Pál I., Fehér I.

Radiohigany-vegyületek sugárterhelésének csökkentése kelátképzéssel.... 473
Szabó I.

Radiohigany-vegyületek rosszindulatu daganatok diagnosztikájában..... 476
Vándor R., Szabó I.

A szivizomzat perfuziójának nukleáris módszerrel, emberen való mérésének lehetőségeiről..... 482
Horváth M., Ludvigh K., Füst L.né, Lengyel T., Szirtes L.

Kálium-43-mal jelzett gyógyászati kálium-klorid előállitása..... 488
Törkő J., Szirtes L.

Pozitiv tumorszcintigráfiás vizsgálatok ^{67}Ga-citráttal..... 492
Zsebők Z., Mártonffy K., Esztergályos J.

9. szám

A nukleáris technika alkalmazása az acél- és fémalapanyagtermelésben... 501
S.P. Kasemsanta

Biológiai minták preparativ hibaforrásai folyadékszcintillációs méréseknél..... 512
Lendvay J., Pertik B-né, J. Nagy É.

A radioaktiv izotópok müszeres és nyomjelzéstechnika ipari alkalmazásaiból származó sugárterhelés..... 521
Uchrin Gy.

Radioaktiv krómmal /^{51}Cr/ jelzett heparin viselkedése biológiai rendszerben..... 534
Varga L., Kubászova T., Antoni F.

10. szám

Az analitikai kémia szerepe a nukleáris anyagok nemzetközi biztositéki ellenőrzésében..... 547
H. Frittum

Nagy áramu, kis feszültségü gyorsitók..... 561
Pető G.

Az ionizáló sugárzás által létrehozott DNS-"single-strand" törések és helyreállitásuk E.coli K12-ben..... 578
Hernádi F., Gábor R., Csongor J.

Izotóppal jelzett streptase előállitása..... 584
Sas V., Kocsár L., Farkas Gy., Kutas V., Urbánné, Nagy Zs.

11. szám

Radiometrikus mérési módszerek alkalmazása a müszálgyártásnál..... 593
Merkle, R.

A cisztein sejtanyagcserére kifejtett hatásainak szerepe a sugárrezisztencia fokozódásában..... 603
II. A hemo-limfopoetikus rendszerre kifejtett hatás
Hernádi F., Kovács P.

Elektronok mozgása szénhidrogénekben..... 611
Schiller R.

Farmakokinetikai vizsgálatok elsősorban ^{14}C-nel jelzett vegyületekkel... 617
Elekes I., Csányi E.

Tumorszcintigráfiás vizsgálatok ^{169}Yb-citráttal..... 626
Pál I., Karika Zs., Tarján Gy., Füzy M.

12. szám

NUKLEÁRIS TECHNIKA ÉS KÖRNYEZETVÉDELEM

A nukleáris technika alkalmazása a környezetvédelemben..... 639
Antoni F., Bártfai Szabó L., Dorogi I., Erdélyszky Zs., Fehér L., Kelemen L., Kovács J., Pavlik O.

Javaslat a Duna radioaktiv szennyezésének nemzetközi ellenőrzésére, a Duna menti országok atomenergia-fejlesztési tervének figyelembevételével..... 654
Kelemen L., Bártfai Szabó L., Mészner J.

Modern radioaktiv hulladékkezelő berendezések Csehszlovákiában, Lengyelországban és a Szovjetunióban..... 663
Pavlik O.

Mikromennyiségü ^{137}Cs meghatározása oldatokból..... 674
Nagy J.

Számitógép alkalmazása személyi filmdoziméterek kiértékelésére..... 679
Bojtor I., Illés Á.

SZERZŐI NÉVMUTATÓ

A	Andrási A.	2	84
	Antoni F.	9	534
		12	639
B	Bálint T.	5	252
	Bánhidi L.	7-8	396
	Barta T.	3	135
	Bártfai Sz.L.	12	639
			654
	Bartha L.	5	265
	Beczner K.	1	32
	Beleznay F-né	2	84
	Benkő L.	3	159
	Bertók L.	7-8	391
	Biró K.	7-8	375
	Bojtor I.	12	679
C	Czeglédi I.	5	244
Cs	Csányi E.	11	617
	Cserép Gy.	6	297
	Csetényi J.	7-8	401
	Csongor É.	2	96
	Csongor J.	10	578
D	Dallos I.	5	237
	Ditrói F.	4	223
	Dobó J.	4	215
	Dorogi I.	12	639
E	Elekes I.	11	617
	Erdélyszky Zs.	12	639
	Erdélyvári I.	2	84
		4	199
	Esztergályos J.	7-8	492
F	Farkas Gy.	7-8	357
			406
			465
		10	584
	Fehér I.	4	199
		7-8	465
	Fehér L.	12	639
	Fekete Z.	2	51
	Földes J.	3	149
		7-8	370
			387
			418
	Földiák G.	6	297
	Frevert, F.	2	64
	Frittum, H.	10	547
	Füst L-né	7-8	482
	Füzy M.	7-8	401
			440
			460
		11	626
G	Gábor R.	10	578
	Gesztesi E.	7-8	370
Gy	Gyertyánfy G.	3	149
H	Haroun, I.A.	2	79
	Hernádi F.	6	336
		10	578
		11	603
	Hernády T.	7-8	375
	Hirling J.	2	51
	Horváth Magdolna	5	270
			275
			279
	Horváth Mihály	7-8	364
			482
	Horváth M-né	7-8	364
	Horváth Z.	6	328
	Horváth Zs.	6	297
	Hrdlicka, Z.	1	16
I	Illés Á.	12	697
J	Jász Á.	7-8	412
	Jedlovszky R.	3	135
K	Kardos Zs.	6	328
	Karika Zs.	7-8	401
			440
			460
		11	626
	Kasemsanta, S.P.	9	501
	Kelemen Á.	7-8	391
	Kelemen Gy-né	7-8	412
	Kelemen L.	12	639
			654
	Kocsár L.	4	209
		7-8	354
			364
			387
			391
		10	584
	Kollin É.	3	149
	Konrády A.	7-8	396
	Kovách A.	7-8	412
	Kovács J.	1	21
		2	79
		12	639
	Kovács M.	2	84
	Kovács P.	11	603
	Kozma L.	5	265
	Krasznai J.	7-8	354
			391
			418
	Kubászova T.	9	534
	Kutas V.	4	209
		7-8	354
			357
			364
			391
		10	584

L	Lakatos L.	4	223
	Lampé L.	4	223
	Lendvay J.	9	512
	Lengyel E-né	7-8	423
	Lengyel T.	7-8	482
	Ligeti J.	7-8	354
	Ludvigh K.	7-8	364
			482
M	Márhoffer J.	5	244
	Mártonffy K.	7-8	375
			492
	Máté L.	7-8	465
	Medveczky L.	1	5
	Merétey K.	4	209
		7-8	354
			387
	Merkle, R.	11	593
	Mészner J.	12	654
	Molnár Gy.	7-8	423
			446
			456
N	Nagy É.	9	512
	Nagy J.	12	674
Ny	Nyul Tóth P.	7-8	460
O	Osvay M.	6	307
P	Pál I.	1	37
		7-8	412
			418
			423
			435
			440
			446
			451
			456
			460
			465
		11	626
	Pavlik O.	12	639
			663
	Péczeli B.	5	252
	Pertik B-né	9	512
	Péter F.	4	223
	Pető G.	10	561
	Piroska E.	7-8	370
	Polgár E.	3	113
	Policzer M.	7-8	396
	Predmerszky T.	7-8	357
			406
	Przedlacki J.	7-8	446
R	Reviczky A.	7-8	378
	Roder M.	6	291
S	Sárdy J-né	7-8	364
	Sas V.	10	584
	Schiller R.	11	611
	Sinkovics M.	7-8	435
			451
	Stützel M.	7-8	423
Sz	Szabadváry F.	4	179
	Szabó I.	7-8	473
			476
	Szalóczy B.	4	186
	Sz-né Számel I.	7-8	401
			440
	Szántó L.	7-8	378
	Szili S.	2	51
	Szilvási I.	7-8	423
			456
	Szirtes L.	7-8	482
			488
	Szokolyi L.	3	123
	Szörényi Á.	3	123
			135
T	Tahy Á.	7-8	396
	Takács J-né	7-8	370
	Tárczy K.	6	307
	Tarján Gy.	7-8	440
			460
		11	629
	Törkő J.	7-8	488
	Török I.	1	21
U	Uchrin Gy.	9	521
	U.Nagy Zs.	10	584
V	Vajta L.	5	233
			252
	Vándor F.	7-8	476
	Varga Gy.	1	32
	Varga L.	7-8	465
		9	534
	Vincze I.	2	79
	Wojnárovits L.	6	297
Z	Zoltán L.	7-8	435
			451
Zs	Zsebők Z.	7-8	492

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 1. SZÁM

BUDAPEST 1973. JANUÁR

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
MTA Atommag Kutató Intézet, 4001 Debrecen, Pf.51

Hrdlička Z.,
Ustav Jaderného Vyzkumu, Řež - Praha

Török István,
Szilikátipari Központi Kutató és Tervező Intézet
1107 Budapest, Bihari ut 6

Kovács József,
Fővárosi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet,
1502 Budapest, Városház u. 9/11

Varga Gyula, Beczner Kálmán,
MTA Talajtani és Agrokémiai Kutató Intézet,
1022 Budapest, Hermann O. ut 15

Pál Imre,
MTA Izotóp Intézet,
1525 Budapest, 114. Pf. 77

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója

Készült a MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v.: Gyenes Imre

Engedély sz.:III/400/s/215/72. Budapest. Index-szám: 25.399

1973. 1. szám. Törzsszám: KFKI-73-7757

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlap-üzleteiben és a Posta Központi Hirlap Irodánál /KHI Budapest V. József nádor tér 1./ 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámára.

Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.- Ft

T A R T A L O M

Neutronradiográfia..... 5
Medveczky L.

Нейтронная радиография

Neutron Radiography

A neutronradiográfia alkalmazásának kifejlesztése és jövõje Csehszlovákiában..... 16
Hrdlicka, Z.

Развитие и будущее применения нейтронной радиографии в ЧССР

Development and Future of the Use of Neutron Radiography in Czechoslovakia

A talajok radioaktiv szennyezettsége az ország különbözõ pontjain.. 21
Török I., Kovács J.

Распределение радиоактивного загрязнения почв по Венгрии

Distribution of Radioaktive Soil Contamination in Hungary

Módositások az IM-1305 tipusu tömegspektrométeren..... 32
Varga Gy., Seczner, K.

Изменение, внесенные в масс-спектрометр типа МИ-1305

Modifications in MI-1305 Type Mass Spectrometer

Radionuklid generátorok orvosi felhasználásának farmakológiai problémái..... 37
Pál I.

Фармакологические проблемы использования генераторов радионуклидов

Pharmacological Problems in the Use of Isotope Cows

HIREK..... 46

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 1. szám.

NEUTRONRADIOGRÁFIA

Medveczky L.
MTA Atommag Kutató Intézete, Debrecen

Elvi alapok. Főbb eszközök és módszerek. Alkalmazási lehetőségek.

Нейтронная радиография
Медвецки, Л.

Основы, важнейшие средства и методы нейтронной радиографии. Возможности применения.

Neutron Radiography
Medveczky, L.

Principles, more important means and methods of neutron radiography. Possibilities of its application.

Radiogramnak szükebb értelemben a vizsgálandó tárgyról rövid hullámhosszu elektromágneses sugárral történő átvilágitással készült képet nevezünk Fényérzékeny rendszerben /legtöbbször röntgenfilmen/ jön létre, vagy fluoreszcens ernyőn észlelhető. A készitéséhez használt sugárforrás röntgen-, vagy γ-forrás; a vizsgálat tárgya lehet élő és élettelen egyaránt. Az előbbi a röntgensugárzás orvosi alkalmazása folytán általánosabban ismert. Az utóbbi, az ipari alkalmazás, a roncsolásnélküli durvaszerkezet-vizsgáló eljárások között foglal el jelentős helyet. Hasonló átvilágitás neutronokkal is végezhető; ezen eljárás neve: neutronradiográfia. A radiográfia és a neutronradiográfia hasonlit egymáshoz, de a technikájuk és alkalmazási területük mégis lényegesen eltér, az elektromágneses és a semleges korpuszkuláris sugárzás jellemzői és előállitási módja miatt.

E rövid ismertetés áttekintést kiván adni a neutronradiográfia elvi alapjairól, főbb eszközeiről és módjairól, valamint a legjelentősebb alkalmazá-

sairól. Nem törekszik teljességre, ehelyett a téma kiterjedt irodalmának néhány összefoglaló közleményére[1-10] és az ott található bibliográfiára utal.

A RADIOGRÁFIA ÉS A NEUTRONRADIOGRÁFIA KÖZÖTTI KÜLÖNBSÉG

A két módszer közötti elvi különbséget az átvilágításhoz használt sugárzás természete közötti eltérés szabja meg. Az elektromágneses sugárzás az anyagon áthaladva az atomok elektronfelhőjével lép kölcsönhatásba. Ebből kifolyólag a nehéz elemeknél az abszorpciós koefficiens értéke, az elektronfelhő sürüsége miatt, nagyobb. A neutronok viszont elektromosan semleges, viszonylag nehéz részecskék, amelyekre, az anyagon áthaladva, az elektronfelhő gyakorlatilag nincs hatással. Abszorpciós koefficiensük a maggal történő kölcsönhatás függvénye, ami viszont nem a rendszámra, hanem az egyes magokra jellemző érték.

Az elektromágneses sugárzás abszorpcióját a szokásos exponenciális kifejezés adja meg:

$$\frac{I}{I_o} = e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)\rho x},$$

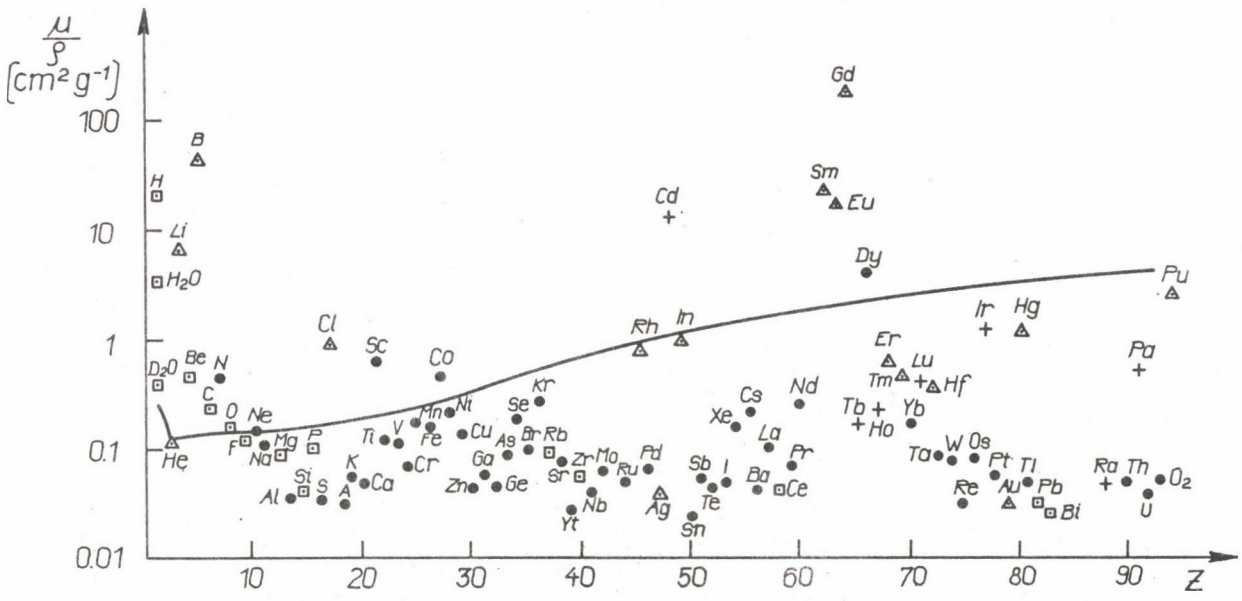
ahol I_o a belépő, I az x cm vastag anyagból kilépő sugárzás intenzitása, μ a ρ sürüségü anyag lineáris abszorpciós együtthatója.

Neutronok esetében a lineáris abszorpciós koefficiens és a hatáskeresztmetszet közötti összefüggés a következő:

$$\mu = N\sigma_t = N\left(\sigma_a + \sigma_s\right),$$

ahol N az abszorbeáló anyag atomjainak száma cm^3-ként, σ_t az abszorpciós /σ_a/ és a szórási /σ_s/ hatáskeresztmetszet összegéből adódó totális hatáskeresztmetszet.

A tömegabszorpciós koefficiens rendszámfüggése különösen termikus neutronoknál szembetünő, mig röntgensugárzásnál értéke monoton növekszik /1. ábra/, azaz szomszédos elemek esetében alig változik. Ezért elektromágneses sugarakkal történő átvilágitással csak olyan anyagrészeket lehet egymástól megkülönböztetni, amelyek rendszáma jelentősen különbözik. A neutronokkal történő "átvilágitásnál" viszont szomszédos elemek, sőt azonos elem különböző izotópjai /pl. ^{10}B és ^{11}B, ^{113}Cd és ^{114}Cd/ is megkülönböztethetők. A neutronok abszorpciós koefficiensét ugyanis az atommagok sajátságai szabják meg. Szomszédos elemekre példa a kobalt és vas, amelyek röntgensugaras átvilágitással nem különböztethetők meg, de a tömegabszorpciós koefficiensük eltérése a neutronradiográfiás felismeréshez már elégséges. Azonos elem különböző izotópjai közül a neutron-tömegabszorpciós koefficiensben mutatkozó jelentős



1. ábra

Az elemek tömegabszorpciós koefficiense 125 kV-os röntgensugárzásra /folytonos vonal/ és termikus neutronokra[6].

- ● csak szórásból
- ⊡ főleg szórásból
- △ főleg abszorpcióból
- \+ csak abszorpcióból

különbség kiemelkedően fontos az ^{238}U és a ^{235}U esetében. E két uránizotóp neutronradiográfiai megkülönböztetése ugyanis az atomipar, a nukleáris erőművek fütőelemeinek vizsgálata szempontjából jelentős.

A NEUTRONRADIOGRÁFIA ESZKÖZEI

Az első neutronradiogram alig néhány évvel a neutron felfedezése után készült egy kis gyorsitó felhasználásával. A kezdeti időszakban a források hozama kicsi volt, és az alkalmas kollimátorok és detektorok is hiányoztak. A reaktorok megjelenésével az intenzitás problémája megoldódott, és az 50-es évek közepén megjelentek az első termikus neutronnyalábbal készült neutronradiogramok[11]. Kétségtelen, hogy a termikus neutronokkal készitett neutronradiogramokkal kapható a legjobb felbontás, és ezek tulnyomórészt reaktorokkal készülnek. A nagy fluxus ugyanis lehetővé teszi a neutronnyaláb jó kollimálását, és ez a radiogram élességét döntően befolyásolja. A legkülönfélébb tipusu reaktorokat használják e célra, egyedül az Amerikai Egyesült Államok-

ban több mint 30-at[4]. Különféle megoldásu expoziciós berendezéseket dolgoztak ki anyagvizsgáló[12-14], és kis reaktoroknál[15] egyaránt.A reaktorok mellett más tipusu neutronforrások, /különféle gyorsitók, radioaktiv neutronforrások, spontán hasadó anyagok/ felhasználása is szokásos. Legujabban lézerrel indukált fuziós berendezésről értesülhettünk[16], ami, ha sikeresen megvalósul, a reaktoroknál szokásosnál kb. három nagyságrenddel nagyobb intenzitásu termikus neutronnyalábot szolgáltat pl. neutronradiográfiás célra is.

A gyorsitók közül a kisfeszültségü /100-400 kV/ neutrongenerátorok jelentősége a legnagyobb. A forgótargetes és a neutroncsöves[17] konstrukcióknál a neutronhozam a müködés során ugyszólván alig változik. Leforrasztott neutroncsővel, amely 10^{11} n/s hozammal többszáz, esetleg egy-kétezer üzemóráig is müködtethető, az ipari röntgen-átvilágitókhoz hasonlóan mozgatható berendezést is készitettek[18]. Már az emlitett hozam is megengedte, hogy a neutronokat lassitva, racionális expoziciós idővel készitsenek radiogramokat. A legujabb eredmény: a 10^{12} n/s-t szolgáltató neutroncső[19] és a 10^{13} n/s hozamot szolgáltató, cirkuláltatott gáztargettel müködő neutrongenerátor[20]. Ha ezek a gyakorlatban beválnak, a kisfeszültségü gyorsitók neutronradiográfiás alkalmazásának területe jelentősen növekedni fog.

Ugyszólván valamennyi tipusu gyorsitóval készült már neutronradiogram[4]. Inkább kuriózumként emeljük ki ezek közül egy 5,5 MeV-es lineáris gyorsitó alkalmazását. Ennél a gyorsitónál - γ-forrásként, illetve fotoneutron-forrásként felhasználva - 1 óránál rövidebb átállási idővel, ugyanazon tárgyról két különféle tipusu radiogram készithető[21].

A reaktorok és a gyorsitók általában helyhez kötöttek. A velük végzett neutronradiográfiához - az emlitett[18] berendezéstől eltekintve - a vizsgálandó anyagot kell a sugárforráshoz szállitani. Helyszinen végzett vizsgálat radioaktiv neutronforrásokkal valósítható meg. További előnye e forrásoknak, hogy "üzemben tartásukhoz" nem szükséges sem kezelőszemélyzet, sem külső energiaforrás. Hátrányuk viszont a kisebb neutronhozam, amiből kifolyólag hosszu expoziciós időre van szükség. A gyorsitókkal összehasonlitva, a neutronhozamot véve alapul, a radioaktiv neutronforrások alkalmazása kevésbé gazdaságos. Az /α,n/ tipusu források közül a ^{210}Po-Be olcsó, de rövid a felezési ideje. A ^{242}Cm-Be forrás felezési ideje ugyan nem lényegesen hosszabb, de kb. két nagyságrenddel nagyobb a fajlagos neutronhozama. A ^{244}Cm-Be kisebb fajlagos neutronhozamu, mégis gazdaságosabb[27], mert a ^{244}Cm az atomenergiaiparban melléktermékként rendszeresen termelődik, és felezési ideje 17,6 év. A fotoneutron-források közül csak a ^{124}Sb-Be-t emlitjük. Olcsó, nagyhozamu, és könnyen termalizálható kis energiája miatt is előnyös, de nagy hátránya a rövid felezési idő és a nagy γ-háttér.

Az izotópos neutronforrások között kitüntetett helyzete van a ^{252}Cf

spontán hasadó elemnek. 1969-ben tünt fel először[23,24] ilyen vonatkozásban. Ma már elég elterjedten alkalmazzák hordozható neutronforrásként[22,25,26]. Nagy előnye igen nagy /2,52.10^{12} n s^{-1} g^{-1}/ fajlagos hozama, az /α,n/ forrásoknál kisebb /2,3 MeV/ átlagos energiája, nem tul rövid /2,63 év/ felezési ideje. Elterjedését kezdetben, a beszerzési nehézségeken kivül, még magas ára is gátolta. Ma már mennyiségi probléma nincs, és remélhető, hogy az ára is tovább mérséklődik.

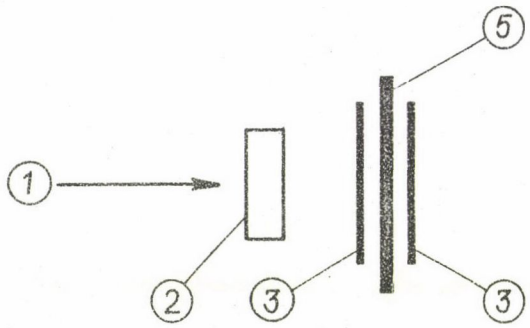
A γ-radiográfiában pontszerü források alkalmazására törekednek. Neutronforrásoknál ez csak gyors neutronokkal valósitható meg. Mint már emlitettük, a jobb feloldásu neutronradiogramokat lassu neutronokkal lehet készitení, amelyek forrása minden esetben terjedelmes. A neutronok lassitásához moderátorra, a nyaláb definiálásához kollimátorra van szükség. Moderátornak olyan anyagok alkalmasak,amelyeknél, kis abszorpciós hatáskeresztmetszet mellett, nagy a szórási hatáskeresztmetszet. Mint jól ismeretes, könnyü és nehéz viz, továbbá grafit a leginkább használatos. A kisfeszültségü gyorsitóknál és radioaktiv neutronforrásoknál találkozunk még paraffin[27], több anyagból összetett[28] és transzformátorolaj[29] moderátorral is.

A nagy kiterjedésü moderált neutronforrás izotróp. Ebből jól definiált nyalábot csak kollimátorral kaphatunk. A neutronok elektromosan semlegesek, ezért a töltött részecskéknél szokásos elektromos és mágneses térrel nem fókuszálhatók. Csak olyan csővel kollimálhatók,amelynek a fala és környezete nagymértékben "átlátszatlan" a neutronok számára. Különféle megoldások ismeretesek, de közülük a kónikus cső a leginkább használatos. Valamennyi tipust a belépőnyilás átmérőjének /D/ és a cső hosszának /L/ hányadosával jellemzik. Reaktoroknál az intenzitásnak köszönhetően a röntgenradiográfiában szokásos D/L$\sim$1/500 értékhez közelálló geometria valósitható meg. A kisebb hozamu forrásoknál azonban ennél kb. egy nagyságrenddel nagyobb (1/30-1/20) értékkel kell megelégedni, ami természetesen csak gyengébb feloldásu radiogram készitését teszi lehetővé.

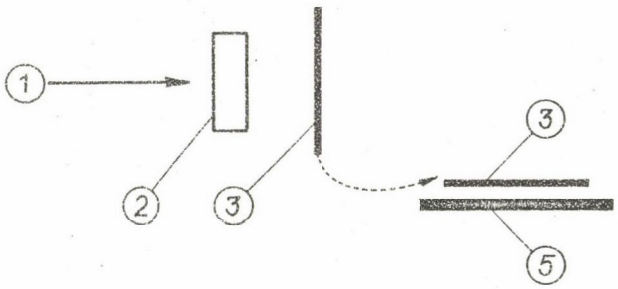
Itt teszünk emlitést a gyors neutronokkal készithető radiogramokról. E forrásokkal jól megvalósitható a röntgen- és γ-radiográfiában használatos geometria.

Az egyes elemek gyors neutronokra vonatkozó tömegabszorpciós koefficiense csak kis mértékben különbözik egymástól, ellentétben a termikus neutronoknál tapasztaltakkal /1. ábra/. Ezért a gyors neutronok alkalmazása, bár pontszerü forrással dolgozhatunk, csak kivételesen látszik előnyösnek[30,31].

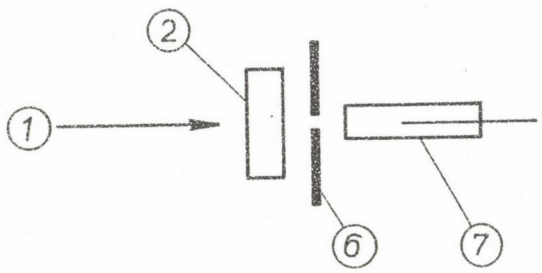
A neutronradiogram rögzitése, illetve észlelése többféle módon valósitható meg. Legelterjedtebb a fotografikus detektálás. Fényérzékeny anyagként leggyakrabban röntgenfilmet használunk. Tekintettel arra, hogy a neutronok közvetlenül előhivható képet nem hoznak létre, konverterre is szükség van.



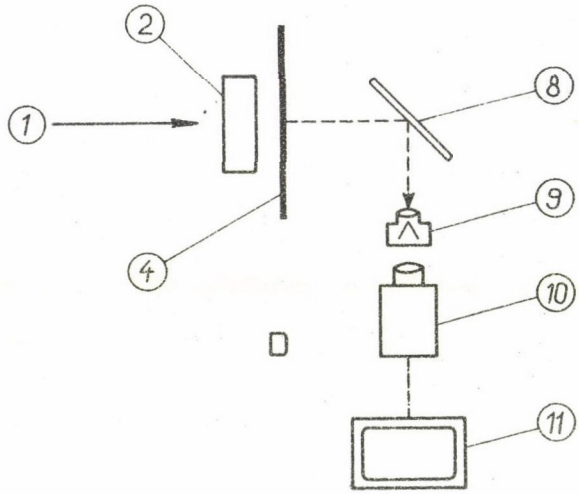
2/A. ábra



2/B. ábra



2/C. ábra



2/D. ábra

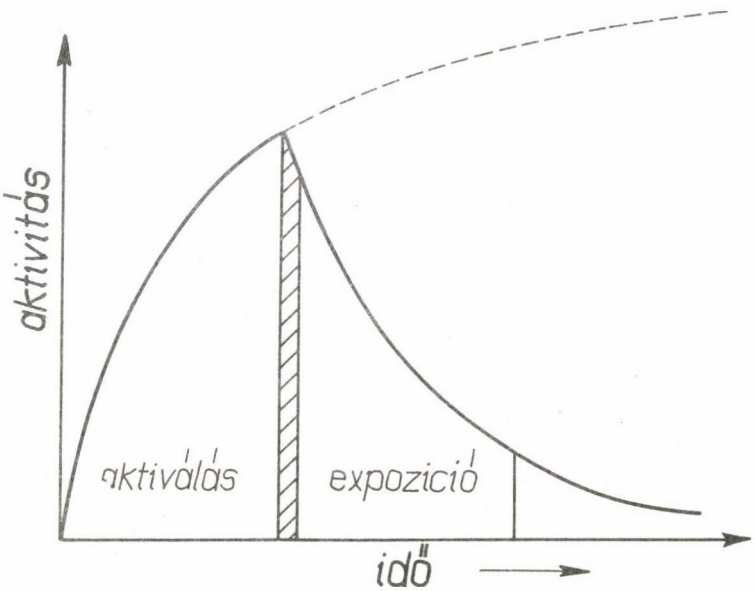
2. ábra

A neutronradiogram készitésének négy változata /A-D/

1. neutronok iránya
2. vizsgálandó tárgy
3. erősitő fólia
4. szcintillátor
5. fényérzékeny fotofilm vagy szilárdtest-nyomdetektor
6. rés- vagy lyukrekesz
7. neutronszámláló
8. tükör
9. képerősitő
10. TV kamera
11. TV monitor

A gyakorlati megvalósitásnak többféle változata van /2. ábra/. A direkt eljárásnál /A/ az expozició, azaz a neutronokkal történő megvilágitás és az autoradiogram készitése egyidőben történik. A /B/ esetben a két kép időben és térben elválasztva jön létre. Ennél az átviteli vagy transzfer módszernél a neutronbesugárzás alkalmával csak egy aktiválandó fólia a detektor, amelyet az aktiválás után fotófilmmel szoritunk össze, s igy kapjuk a neutronradiogramot. Mindkét módszernek megvan az előnye és a hátránya. Technikai, de nem lényegtelen részlet, hogy a direkt módszert készithetik egy vagy két fóliával. Ha egy fóliát alkalmaznak, a tárgy és a film közé, de a neutronok irányát tekintve a film mögé is helyezhetik.

A direkt expozicióhoz konverter fóliaként általában olyan anyagokat használnak fel, amelyen prompt/n,γ/ vagy elektronemisszióval járó magfolyamatok jönnek létre. Legtöbbször gadolinium fémfóliát használnak, mert termikus neutronokra igen nagy a hatáskeresztmetszete, és a kis energiáju /~ 70 keV/ belső konverzióból származó elektronokkal nagyon jó képfeloldás érhető el. ^{6}Li és ^{10}B alkalmazása is szokásos, az /n,α/ magfolyamatok hasznositásával, legtöbbször foszforokkal együtt. A transzfer módszernél a konverter anyagának megválasztását a hatáskeresztmetszet értékén kivül a felezési idő is jelentősen befolyásolja. Az információt adó aktivitás a fóliában keletkezik a neutronbesugárzás alatt, majd a felaktivált fóliát sötét kamrában fényérzékeny filmmel csomagolják össze, s igy kapják a radiogramot. /3. ábra/



3. ábra

Az aktivitás időbeli változása a transzfer módszernél. A vonalkázott rész az átvitel és csomagolás időtartamát jelzi.

Könnyü belátni, hogy az aktiválást nem célszerü tetszőleges időtartamig folytatni, mert a felezési időtől függően telitődés következik be. A transzfer módszernél aktiválandó fóliaként általában diszpróziumot, ritkábban indiumot alkalmaznak, bár több kisérletről tudunk arany, ezüst és ródium felhasználására vonatkozóan is. Az optimális képfelbontást és expoziciós időt ezen kivül még több tényező befolyásolja. A kollimátor már emlitett méretein kivül a szerkezet többi adatának, anyagának, a vizsgálandó tárgy méretének és anyagi összetételének, a használt fotóanyag tulajdonságainak és nem kevésbé a neutronforrás spektrumának és hozamának egyaránt jelentős befolyása van. Pl. direkt módszerrel, nagy érzékenységü filmen termikus neutronokból már 5.10^{-5} n cm^{-2} elégséges feketedést hoz létre, ha a fotografikus detektálást szcintillátorral kombinálva végzik. Hasonló feltételek mellett, de ^{6}Li-mal kevert Zn/Ag/ foszfor helyett fém konverterrel, kb. harmincszoros expozicióra van szükség[4].

A fényemittáló ernyőknek másik nagy jelentősége, hogy közvetlen észlelésben nem-fotografikus detektálást is lehetővé tesz /2. ábra, D/. A szcintillációs ernyő mögé elhelyezve a szcintilláló ernyőn létrejött neutronradiogram vizuálisan észlelhető. Gyakorlatilag képerősitő csövet helyeznek el, és az ezen létrejött képet figyelik ipari televizióval. Ennek a módszernek különösen mozgó tárgyak /pl. fémcsőben áramló folyadék/, pulzáló reaktorok neutronradiografálásánál van különösen nagy jelentősége.

Az emlitett módszereken kivül neutronokkal végzett anyagvizsgálat elvileg neutronszámlálóval is megvalósitható /2. ábra, C/. Ehhez az kell, hogy az együtt mozgó neutronelnyelő rekesz és egy neutronszámláló az időben állandó neutronfluxussal átvilágitott minta mögött a neutronintenzitások térbeli eloszlását letapogassa. A technikai nehézségek miatt ez és a szikraszámlálóval végzett próbálkozás[1] is csak a módszer története szempontjából bir jelentőséggel.

A nem-fotografikus módszerek között az utóbbi években sikeresen alkalmazták a szilárdtest nyomdetektorokat[30, 31]. Neutrondetektorként cellulóznitrát fóliát használtak, amely előtt természetes izotópösszetételü litiumborát erősitő ernyő volt elhelyezve. A /n, α/ magfolyamatból származó α-részecskék szubmikroszkópikus méretü diszlokációs helyet hoznak létre a müanyagfóliában, amelyet, kémiailag feltárva /maratva/, optikai mikroszkóppal is jól észlelhetünk. Ahhoz, hogy a nyomok fotometrikusan is mérhető, illetve szabad szemmel észlelhető homályosodást hozzanak létre, több mint 10^{5} nyom cm^{-2} szükséges. Ezt az értéket a detektorfólia anyagi minősége és a nyomfeltárás körülményei is befolyásolják[32]. Urán konverter segitségével, hasadványnyomokkal is készithető neutronradiogram. A szükséges expozició $1{,}3.10^{-5}$ nyom.barn^{-1} neutron^{-1} alapján[33] számitható. Szilárdtest-nyomdetektor müanyagfóliákban kb. 10^{9} neutron cm^{-2} szükséges a neutronradiogramhoz termikus neutronoknál, dusitott urán-235 vagy természetes litiumborát ernyővel. Dusitott ^{6}Li-F konver-

terrel a hatásfok közel egy nagyságrenddel javitható.

A szilárdtest-nyomdetektorok előnye elsősorban a γ-sugarak iránti érzéketlenség,- ami a direkt expozicióban való felhasználásukat teszi lehetővé-, továbbá, a nyomok rövid hatótávolsága miatt, a jó térbeli feloldóképesség. A γ-érzéketlenség, a nyomok stabilitása következtében, lehetővé teszi nagy aktivitásu tárgyak neutronradiográfiás vizsgálatát kis hozamu forrásokkal, hosszu expoziciós idővel is.

E módszer hátránya a viszonylag kis vizuális kontraszt; ezen az ilyen célra gyártott fóliák /Kodak-Pathé LR 115/ szinezésével sikerült jelentősen segiteni[34]. További hátránya még jelenleg a kiértékelés nehézkessége. Amennyiben a nyomsürüség a fotometriai kiértékeléshez nem elégséges, a nyomokat mikroszkóp alatt kell észlelni, illetve számolni, ami igen fáradságos. A szilárdtest-nyomdetektorok nem-optikai uton történő észlelési módjai közül az "ugró szikra" módszernek[35] van nagy jelentősége. Gyors módszer, de csak hasadványoknál és csak viszonylag kis nyomsürüségnél /10^3 nyom.cm^{-2}/ használható. A neutronradiográfiában való eredményes alkalmazáshoz még több technikai nehézséget kell leküzdeni.

ALKALMAZÁSI LEHETŐSÉGEK

A módszer elvi alapjainak ismeretében, valamint az elektromágneses sugárzással végzett radiográfiával való párhuzamból nyilvánvaló, hogy mely területeken lehet a neutronradiográfiát előnyösen alkalmazni.

Tipikus alkalmazási területe a radioaktiv anyagok radiográfiája, ez a nukleáris ipart érinti. A radioaktiv tárgyakról nagyon nehéz röntgenképet készitени, mert a tárgyból származó sugárzás a fényérzékeny filmeken erős alapfátyolt idéz elő. A neutronradiográfia viszont transzfer módszerrel, de a γ-sugárzásra érzéketlen szilárdtest-nyomdetektorokkal a direkt módszerrel is, jól alkalmazható. A nukleáris iparban a neutronradiográfia más célokra is jól hasznositható, igy fütőelemek egyenletes eloszlásának, sugársérülésének, szabályozórudak homogenitásának ellenőrzésére, neutronárnyékolások megvizsgálására, hütőcsövekben lévő szerves anyagok, fémzárványok /Ti és Zr-hidridek/, bór összetevők kimutatására, stb.

Sokoldaluan alkalmazható a módszer a rakéta-, és repülőgépgyártásban, a robbanóanyagok technikájában is. Vizsgálható pl. a méhsejtszerkezetek egyenletessége és gyantalerakódása, gyutacsok bórösszetevőinek és robbanó anyagoknak eloszlása fémtokokban, gumi és müanyag tömitések esetleges deformálódása csövekben és más fém alkatrészekben.

A fenti példák jelentős részében könnyebb elemet kellett nagyobb mennyiségü nehezebb jelenlétében kimutatni. Ez röntgenátvilágitással nem végezhető el. Neutronradiográfiával azonban néhány könnyü elemet /pl. H, Li, Be, B/ jól

lehet detektálni. Nehéz fémszerkezetben /pl, vákuumtömitések/ szerves komponensek mutathatók ki. A tömegabszorpciós koefficiens értékében mutatkozó különbség más területeken történő felhasználást is lehetővé tesz. Igy könnyen kimutatható a bór eloszlása bór-aluminium ötvözetben, vagy a kadmiumé kadmium-ón ötvözetben. Ez röntgentechnikával szintén nem észlelhető.

Anélkül, hogy a teljességre törekednénk, még az alábbi vizsgálati lehetőségeket emlitjük meg: nagy vastagságu acélok /kb. 15 cm/, különösen nehéz elemek /U, Pb, Bi, W, Ti, Pt stb./ amelyek neutronokkal szemben jól "átlátszók", komplex alkatrészek /pl. szerszámok gyémánt- vagy W-heggyel/, Cd bevonatok, müanyagbevonatok /koaxiális kábelek/ vizsgálata.

Külön kell szólni az orvosi és biológiai felhasználás lehetőségéről. Többen próbálkoztak gyors neutronok klinikai diagnosztikai alkalmazásával[5], de a képen csekély kontrasztot kaptak, s igy a próbálkozásokat eredménytelennek kell minősiteni, még a csontok által takart lágy szövetek, daganatok esetében is. Eredményesen általában a hidrogéntartalmu anyagok sürüségének eloszlása vizsgálható.

Befejezésül említést kell tennünk a hazai viszonyokról és lehetőségekről is. Magyarországon anyagvizsgálat céljára készült neutronradiogramról eddig nem tudunk. Sőt a módszert magyar nyelven alig ismertették[36, 37]. Az itthonihoz hasonló körülmények között született eredményeket[38] megvizsgálva azonban a módszer alkalmazásának szükségessége, megvalósitásának lehetősége nyilvánvaló.

IRODALOM

1. *H. Berger*, Neutron Radiography, Elsevier, Amsterdam, 1965
2. *H. Berger*, Brit. J.NTD, 14 /1972/ 34 és Mater. Eval. 30 /1972/ 55
3. *W. Lausch*, Kerntechnik 13 /1971/ 82
4. *H. Berger*, A.Rev.Nucl. Eci. 21 /1971/ 335
5. *A.R. Spowart*, J.Phys. E: Sci. Instr. 5 /1972/ 497
6. *R.S. Matfield*, Atom, No. 174, April 1971, p.84
7. *J.P. Perves*, La neutrographie. Novelle méthode de controle non destructif. PI 750-016/70, le 8. Janvier 1970, CEA-CEN-G; Service des Piles.
8. Neutron Radiography Newsletter, Evanston, Ill. Am. Soc. Nondestruct. Test. 1964
9. *Z. Hrdlička*, UJV 2545 - R,T./1971/
10. *J.P. Barton*, Proc. Conf. Use of Small Accelerators for Teaching and Research, CONF-700322, 1970, 321-344.
11. *J. Thewlis*, Brit. J. Appl. Phys. 7 /1956/ 345
12. *I.C. Hendry*, Nucl. Enging. 13 /1968/ 106
13. *P.J. Munk*, de *H.P. Leeflang*, RCN-135 /1971/

14. *J.P. Barton, J.P. Perves,* Brit.J.NDT 8 /1966/ 79
15. *G.D. Bouchey, S.J. Gage,* Isotopes and Rad. Technology 7 /1970/ 294
16. *R.M. Brugger,* Nucl. Technology 15 /1972/ 14
17. *O. Reifenschweiler,* Philips Res.Repts. 16 /1961/ 401
18. *A.R. Spowart,* Nucl.Instr.Meth. 92 /1971/ 613
19. *O. Reifenschweiler,* Proc. 1st Symp. Neutron Dosimetry in Biology an Medicine. Neuherberg/München, May 15-19, 1972, 821-837.
20. *C.A. Kelsey, G.C. Spalek,* és mások, ugyanott 811-820.
21. *R. Halmshaw, C.A. Hunt,* Proc. 6th Int. Conf. Nondestruct. Test. Hannover, 1970, M: 51-62.
22. *J.P. Barton,* Nucl. Technology 15 /1972/ 56
23. *J.L. Cason, B.C. Shaw,* Trans. Am. Nucl. Soc. 12 /1969/ 464
24. *J.P. Barton, M.F. Klozar,* Trans. Amer.Nucl.Soc. 12 /1969/ 465
25. *J.P. Barton,* Isotopes Rad. Technology, 7 /1970/ 285
26. *C.B. Shaw, J.L. Cason,* Mater. Eval. 29 /1971/ 40
27. *A.J. Cox, P.E. Francois,* Nucl. Instr. Meth. 92 /1971/ 585
28. В.А. Букарев, Ю.Н. Назаченков, А.С. Штань, В.С. Яскевич, Радиационная техника 3 /1969/ 207
29. *A.R. Spowart,* Nucl. Engng. 13 /1968/ 429
30. *H. Berger,* Mater. Eval. 27 /1969/ 245
31. *H. Berger,* Int.J. Appl. Rad. Isotopes 21 /1970/ 59
32. *Somogyi G., D.S. Srivastava,* Int. J. Appl. Rad. Isotopes 22 /1971/ 289
33. *K. Becker,* Health Phys. 12 /1966/ 769
34. *J. Barbier,* J. Phot. Sci. 19 /1971/ 108
35. *W.G. Gross, L. Tommasino,* Proc.Intern. Topical Conf. Nucl. Track Registration in Insulating Solids and Applications, Clermont-Ferrand Vol.1, /1969/ III-73.
36. *Réti P.,* Gép 22 /1970/ 458
37. *Kiss D.,* Neutronradiográfia. Neutronfizika /szerk. Kiss D. és Quittner P./ Akadémiai Kiadó, Budapest 1971, 933-940
38. *Z. Hrdlička,* Izotóptechnika 16 /1973/ 16

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 1. szám.

A NEUTRONRADIOGRÁFIA ALKALMAZÁSÁNAK KIFEJLESZTÉSE ÉS JÖVŐJE CSEHSZLOVÁKIÁBAN

Z. Hrdlička
Ustav Jaderného Vyzkumu, Řež - Praha

A VVR-Sz reaktor uj besugárzó csatornájának terve. Az SR-OA reaktor, mint neutronforrás. Besugárzott reaktorcsatornák, kiégett fütőelemek radiográfiája. Néhány eredmény. A fejlődés feltétele: uj neutronforrások kidolgozása.

Развитие и будущее применения нейтронной радиографии в ЧССР
Хрдлична, З.

План нового облучательного канала реактора ВВР-С. Реактор СР-ОА, как источник нейтронов. Радиография облученных канал реактора и использованных ТВЭЛ-ов. Результаты. Условием дальнейшего развития является выработка новых источников.

Development and Future of the Use of Neutron Radiography in Czechoslovakia
Hrdlička, Z.

Plan of a new irradiation channel in the VVR-S reactor. The SR-OA reactor as a neutron source. Radiography of irradiated reactor channels, and burnt fuel elements. Results. The condition of further development: the construction of new neutron sources.

BEVEZETÉS

A neutronradiográfia, amely az utóbbi 10 év óta már fontos szerepet tölt be a radiográfiás módszerek között, ujabban Csehszlovákiában is érdeklődést váltott ki. Az irodalom áttekintése után,[1, 2] 1971 első felében, a Řež-i Atommagkutató Intézetben előzetes kisérleteket végeztek[3]. Legujabban néhány, az intézeten kivül felmerült müszaki probléma megoldását is megkiséreltük[4].

Jelen közlemény nagy vonásokban áttekinti az eddig végzett munkát, körvonalazza a módszer továbbfejlesztésére irányuló, a jelenlegi csehszlovák kisérleti feltételeket figyelembe vevő törekvéseket, valamint a jövőbeni lehetőségeket.

NEUTRONFORRÁSOK

Neutronforrásul mindeddig a 4 MW maximális hőteljesitményü VVR-Sz kutatóreaktor szolgált. A kisérleti berendezés egy 60 mm átmérőjü horizontális csatornára épült, amely kollimáció nélkül, $3{,}4.10^7$ neutron/cm^2s termikus neutront szolgáltat a besugárzás sikjában /a csatorna nyilásától mintegy 100 cm távolságra/. Az alkalmazott kónikus aluminium kollimátor hossza 900 mm; bemenő nyilásának átmérője 10 mm, töltete kristályos bórsav és paraffin keveréke. A kollimálás növelésére a belépő ablak elé egy kisebb átmérőjü diafragmát lehet helyezni. A kollimátor 10 mm átmérőjü diafragmával $5{,}8.10^6$-ra, 5 mm átmérőjü diafragmával 9.10^5 neutron/cm^2s értékre csökkenti a primér neutronnyalábot. A kollimálás foka 1:200, illetve 1:400.

A fent leirt berendezéssel a neutronnyaláb optikai élesség tekintetében elsőrendő, mégis szük és inhomogén intenzitásu, igy radiográfiai alkalmazhatósága meglehetősen korlátozott. Lényegében csak kicsiny tárgyak radiográfiájára alkalmas. Sőt, olyan radioaktiv anyagok radiográfiája, mint pl. kisérleti hurkok és mérőfejek csövei, valamint kiégett fütőelemek vizsgálata, melyre nézve a módszer döntő értékü, a szomszédos vizszintes csatornákban folytatott kisérletek jelentős kölcsönös zavarása nélkül csak nehezen végezhető.

Ezen körülmények alkalmasabb besugárzó berendezést tettek szükségessé a termikus oszlopnál. Ez jelenleg még terv, de majd optimális feltételeket biztosit a neutronradiográfiához. Az uj csatornának a következő követelményeket kell kielégitenie:

- legalább 250 mm átmérőjü kollimált nyalábot biztositson az expoziciós sikban;
- a kollimálás fokát egyszerüen lehessen ellenőrizni a kollimátor eltávolitása nélkül, cserélhető diafragmákkal;
- a nyaláb spektrumát szürőkkel lehessen ellenőrizni a kollimátor eltávolitása nélkül;
- hütött szürőt lehessen felszerelni hideg neutronok előállitásához;
- tárolót lehessen biztositani a reaktorhurkok és mérőfejek besugárzott kisérleti csöveinek, valamint kiégett fütőelemeknek a nyaláb expoziciós zónájába történő bevitelére;
- konverter fóliákat lehessen az expoziciós zónába vinni és onnan visszanyerni a reaktor müködése közben.

A rekonstrukció feltehetően 1972 végéig befejeződik, és azután a radiográfia széleskörü alkalmazására[5] nyilik lehetőség.

Neutronradiográfiás célokra potenciális neutronforrás a SKODA Nemzeti Vállalat /Pilzen/ fizikai laboratóriumában müködő SR-OA reaktor.

Ez szintén vizhütéses és vizmoderátoru reaktor és fütőelemei ugyanolyanok, mint a VVR-Sz reaktoré. A konvekciós hütés és a mérsékelt biológiai vé-

delem nem engedi meg a kb. 10 W feletti hőteljesitményt, az elérhető maximális neutronfluxus az aktiv zóna határán mégis kb. 5.10^7 neutron/cm^2s. Az aktiv zóna egy 200 mm átmérőjü horizontális csatornával elérhető, amely 20 mm-es belépő ablaku, kb. 1 méter hosszu, kupos kollimátor felszerelésével közepes minőségü neutronradiográfiás csatornát biztositana. 2:100 kollimációs foknál, ésszerü expoziciós idők mellett /becslés szerint indium használata esetén kb. 1 óra/, elképzelhető, hogy jó minőségü képet kapjunk. A csábitó előny itt természetesen a nagy expoziciós felület, ami nagyméretü tárgyak képének egyetlen felvétellel történő elkészitését engedi meg.

A TERVEZETT ALKALMAZÁSOK

Tekintettel a Řež-i intézet kutatási főirányára, /atomenergetikai technológiai kisérleti kutatás/ a figyelem jelenleg főként a besugárzott kisérleti reaktorcsatornák és kiégett fütőelemek vizsgálatával foglalkozó radiográfiai szolgálat előkészitésére irányul. Ezen kivül igen kis tárgyak, főként elektrónikus elemek neutronradiográfiájára szolgáló eljárásokat dolgozunk ki; erre a módszer kiválóan alkalmas. A kisérleti munka terve tartalmazza még forrasztott és hegesztett sinillesztések radiográfiáját, valamint - különösen a már emlitett fütőelemeknél - a repedések láthatóvá tételére kapilláraktiv kontrasztfolyadékok használatát. A neutronradiográfia specifikus képformáló tulajdonságainak felhasználását néhány olyan tudományágban, amely a röntgenradiográfiát állandóan használja, szintén mérlegeltük. Néhány vizsgálat alapján lehetségesnek tartjuk az archeológiai kutatásban és antik festmények kormeghatározásában történő felhasználását.

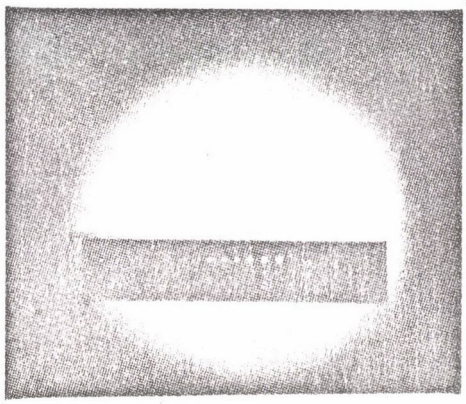
NÉHÁNY EREDMÉNY

A neutronradiográfia terén a Řež-i VVR-Sz reaktor kisérleti berendezései által biztositott lehetőségek illusztrálására néhány felvételt mutatunk be. A minőség helyes értékelése azonban csak eredeti felvételekről lehetséges, és csak közelitően a másolatokról.

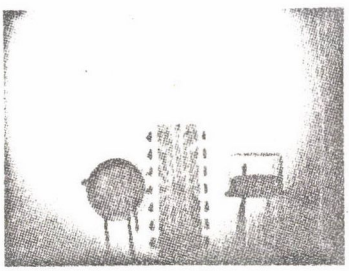
Az 1. ábra kadmium ellenőrző lemezt ábrázol, két sor 1-0,2 mm, illetve 0,2 - 0,1 mm átmérőjü lyukkal. A lemez szélével kb. egy vonalban, a neutronforráshoz közelebb eső oldalán, 2 mm - 6 mm vastag, lépcsőzetes, 1 mm lépcsőmagasságu fémurán lemez takarta. A kép ORWO Supervidox TF 10 tipusu röntgenfilmről kontakt másolattal készült.

A 2. ábra tranzisztor és egy integrált áramkör radiogramja, melyen a 0,3 mm-nél vékonyabb arany huzalok jól felismerhetők. A kép ugyancsak Supervidox TF 10 tipusu negativról készült, melynek szemcséssége nagyitást és jobb felbontást nem tesz lehetővé.

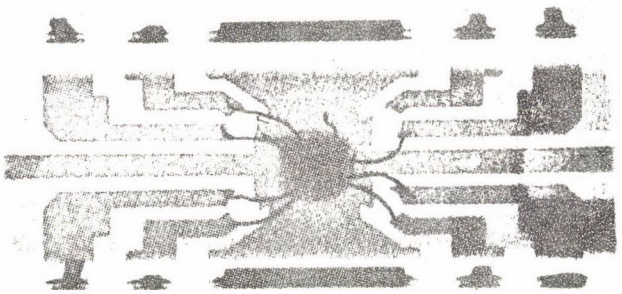
A következő képek azt demonstrálják, hogy a neutronradiogram minősége



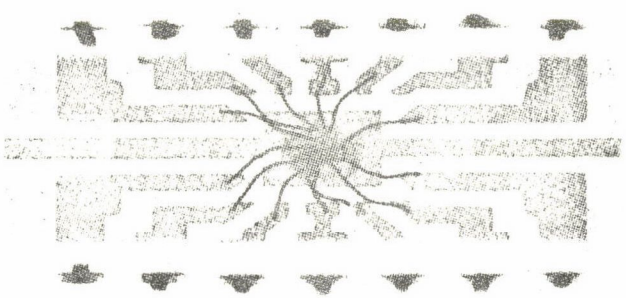
1. ábra



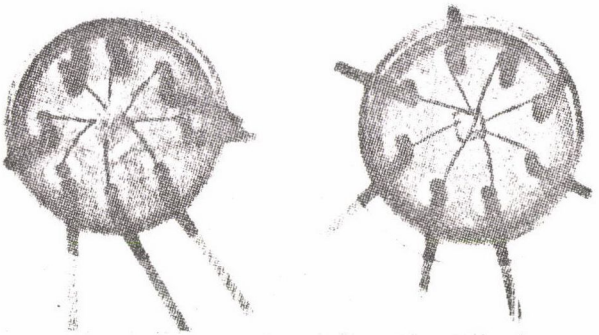
2. ábra



3. ábra



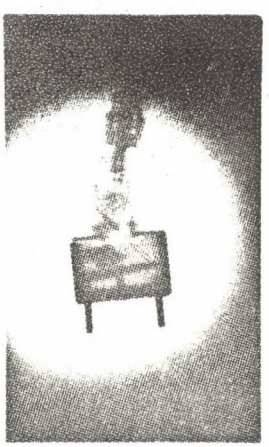
4. ábra



5. ábra



6. ábra



7. ábra

szempontjából mennyire fontos a negativ anyag minősége és tipusa. A 3.-5. ábra a 2. ábrához hasonló tárgyakat mutat. Structurix D 2 /Agfa Gevaert/ és Industrial F /Ilford/film olyan nagyitást tesz lehetővé, amely a vizsgált tárgy alkatrészeinek képét részleteiben is a legélesebben adja vissza. Ezek a neutronradiogramok egyértelmüen bizonyitják, hogy neutronokkal készithető mikroradiogram, továbbá, hogy a módszer felbontóképességének korlátját a film minősége szabja meg.

A 6. és 7. ábra mikrokapcsoló röntgensugárral és neutronokkal készitett radiogramját hasonlitja össze. Különösen nyilvánvaló a különbség a rozsdamentes acél és a müanyag alkatrészek képénél: a neutronradiogramok összehasonlithatatlanul kontrasztdusabbak.

KÖVETKEZTETÉS

A neutronradiográfia a radiografikus módszerek lehetőségeit és változatosságát megfelelően kiegészíti. Csehszlovákiában a nukleáris energetika és esetleg az elektronika veszi majd nagy hasznát a módszernek az elkövetkezendő időkben. A bázis neutronforrások jelenleg atomreaktorok. Ha majd az egyéb neutronforrásokból elegendő intenzitás áll a kisérletek rendelkezésére, a neutronradiográfia alkalmazása előtt még nagyobb perspektivák nyilnak meg számos más tudományágban is.

IRODALOM

1. Z. *Hrdlička.*, UJV 2545-R,T
2. Z. *Hrdlička.*, UJV 2553-R
3. Z. *Hrdlička.*, UJV 2686-R
4. Z. *Hrdlička.*, UJV 2653-R,M
5. Z. *Hrdlička.*, UJV 2656-R

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 1. szám.

A TALAJOK RADIOAKTIV SZENNYEZETTSÉGE AZ ORSZÁG KÜLÖNBÖZŐ PONTJAIN

Török I.* Kovács J.**,
* Szilikátipari Központi Kutató és Tervező Intézet, Budapest
** Fővárosi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet, Budapest

A szennyezés földrajzi, időjárási, talajkémiai és -fizikai és agrotechnikai tényezői. A fallout mérésének módszere. Eredmények.

Распределение радиоактивного загрязнения почв по Венгрии
Тэрэк, И., Ковач, И.

Географические, метеорологические, почвохимические и -физические и агротехнические факторы распределения. Метод измерения радиоактивного выпада.

Distribution of Radioactive Soil Contamination in Hungary
Török, I., Kovács, J.

Geographical, meteorological, soil chemical and physical, and agrotechnological factors of contamination. Method of fallout measurement. Results.

A környezeti radioaktivitás mérése során fontos szerepet kapott a talajfelszinen mért radioaktiv szennyeződés értékelése.

A fallout radioaktivitás elemei közül legtöbbször csak a ^{90}Sr és a ^{137}Cs vizsgálatával foglalkoznak, mivel ezek radiotoxicitása a legnagyobb, és hosszu felezési idejük miatt lebomlásuk kismértékü, tehát közel állandó szennyeződést jelentenek.

A biológiai körfolyamat fontos része a talaj, amely a légkörből az esővizzel lecsapódott radioaktiv anyagok első állomása és egyben felhalmozódási helye is. A talaj radioaktiv szennyeződésének kialakulása több tényezőtől függ.

Igy a *földrajzi tényezők* közül az illető terület földrajzi fekvése, valamint a felszini módosulat jelentős kihatással van rá, mivel sik területen és hegyes vidéken, lejtőkön, különbség mutatkozik a radioaktiv anyagok megkötődésében.

A meteorológiai tényezők közül elsősorban a csapadék mennyisége a döntő. Nagyobb évi átlagos csapadék esetén a csapadékkal a talajra jutó radioaktiv anyagok mennyisége is nő.

Talajkémiai-fizikai tényezők A talaj kémiai összetevői közül különösen a kalcium-tartalom döntő tényező a ^{90}Sr szennyeződés hatásának megállapitásánál[1]. Nagyobb kalcium-tartalmu talajokon a stroncium nehezebben kötődik meg, és a növényeket is kevésbé szennyezi. A ^{90}Sr szennyeződés mértéke talajoknál az 1 g kalciumra vonatkoztatott pCi ^{90}Sr aktivitás-értékkel jellemezhető, és ezt Sr-egységnek nevezzük.

A Sr hasonló kémiai viselkedésü, mint a Ca, ezért a talajvizsgálatoknál a Ca ugy szerepel, mint a ^{90}Sr inaktiv hordozója. Ezt a mérésnél figyelembe is vesszük.

A talaj pH-értéke is befolyásolja a ^{90}Sr megkötődését, bár a Ca tartalomához képest a jelentősége kisebb.

A talaj fizikai állapota, elsősorban az agyagásványok mennyisége döntő a ^{90}Sr megkötődésében. Nagyobb agyagtartalomnál a ^{90}Sr jobban megkötődik, és mozgása lassubb; az esőviz hatására csak kis mértékben mosódik ki és kerül a mélyebb rétegekbe. Homokos talajon a ^{90}Sr megkötődése kisebb, mozgása nagyobb, igy kedvező vizgazdálkodási viszonyok között fokozatosan az alsóbb rétegekbe kerül, és bizonyos idő után a növények számára már nem elérhető és felvehető[2].

Agrotechnikai tényezők A radioaktiv szennyeződés felhalmozódását jelentősen befolyásolja az illető terület müvelési módja. A mezőgazdaságilag rendszeresen müvelt területeken a ^{90}Sr egyenletesen eloszlik a talaj felső 20 cm-ében, és fokozatosan lejjebb hatol az alsóbb rétegekbe. Legelőkön és mezőgazdaságilag nem müvelt területeken a talaj felső 0-5 cm-es rétegében halmozódik fel a radioaktiv anyag és, a talajtani adottságoktól függően, a csapadék hatására kerül lassan az alsóbb rétegekbe.

Különösen megfigyelhető ez a megkötődés szikes legelőkön, ahol évek óta nem müvelték a talajt, és a rossz vizgazdálkodási viszonyok miatt, a ^{90}Sr a talaj felső 2-3 cm-ében akkumulálódott.

A ^{90}Sr mellett a ^{137}Cs is fontos radioaktiv szennyező elem a talajban. Kémiai viselkedése a káliuméhoz hasonlit, igy a káliummal együtt kötődik meg a talajban. Az agyagásványok erősen megkötik a káliumot és a cesiumot, igy a ^{137}Cs csak a talaj felső néhány cm-ében kimutatható. Mozgása lassu, növények számára sokkal nehezebben felvehető, mint a ^{90}Sr.

Megállapitották, hogy a $^{137}Cs/\ ^{90}Sr$ viszony a talajban 1,6 körüli érték. Igy a talajok radioaktiv szennyezettsége az egyik elem mérésével is megfelelő pontossággal megállapitható.

Talajtani tulajdonságoktól függő eljárással a talajra jutott radioaktiv

szennyező anyag növényekbe történő továbbjutását megakadályozhatjuk. Mésztartalmu talajadalékanyag csökkenti a növények ^{90}Sr felvételét, vagy vizes elárasztással elérhetjük, hogy a radioaktiv anyag laza szerkezetü talajok esetén mélyebb rétegekbe mosódjék. Ennek különösen akkor van jelentősége, ha mezőgazdaságilag fontos terület szennyeződik (esetleg reaktorbaleset folytán), és a talajtani adottságoktól függően a talajt dekontaminálni kell, meghatározva azokat a körülményeket, amelyek figyelembevételével továbbra is hasznositható marad a kérdéses terület.

A talajból a növényekbe felszivódott és a táplálékba, majd az emberbe került radioaktivitás a kiindulási aktivitáshoz viszonyitva változik. A különböző szennyeződési folyamatoknál un. diszkriminációs faktor(DF_1, DF_2, DF_3, DF_4)állapitható meg, amely mutatja, hogy az előző lépcsőből a szennyeződésnek milyen hányada ment tovább a biológiai láncfolyamat következő elemébe.

A környezeti radioaktivitás felmérésénél a talaj radioaktiv szennyezettségéből következtethetünk a biológiai folyamatokba belépő, továbbmenő szennyeződés mértékére. A felszivódott és a talajban lévő radioaktiv anyag mennyiségét a mellette lévő inaktiv hordozó-anyaghoz viszonyitják, a ^{90}Sr esetében a Ca-hoz, a ^{137}Cs esetében pedig a K-hoz.

^{90}Sr-re megállapitották, hogy a diszkriminációs faktor talaj/növény esetében:

$$D\,F_1 = \frac{^{90}Sr/Ca\ növény}{^{90}Sr/Ca\ talaj} = 1;$$

ebből látható, hogy a talaj Ca-tartalma döntő tényező.

Különböző növények Sr-felvételét tanulmányozva[3] megállapitották, hogy 3 mg/g talaj felvehető Ca-tartalom alatt a felvett ^{90}Sr a növényben 4-5-szörösére emelkedik a nagyobb Ca-tartalmu talajon mért ^{90}Sr felvételhez viszonyitva.

A talajfelszin radioaktivitásához viszonyitva a növények radioaktivitását, többéves mérési tapasztalatok során /*Bortolli* et al. 1965/ megállapitást nyert, hogy a fü-félék ^{90}Sr radioaktivitását jól megbecsülhetjük a talajfelszinen mért ^{90}Sr radioaktiv szennyezettség mértékéből.
Ennek megfelelően:

$$\frac{^{90}Sr\ pCi/g\quad fü}{^{90}Sr\ mCi/km^2\quad talaj} = 0{,}02.$$

Ennél az értékelésnél az esetlegesen kiugró nagyobb havi fallout aktivitást figyelembe kell venni, és az összaktivitást ehhez az értékhez kell viszonyitani.

A ^{137}Cs felvétele a növények számára sokkal kisebb mértékü, mint a ^{90}Sr felvétele. A diszkriminációs faktor:

$$D\ F_1 = \frac{^{137}Cs/K\ növény}{^{137}Cs/K\ talaj} = 0{,}01.$$

A növények radioaktivitásából a tejben jelentkezik.

A diszkriminációs faktor:

$$D\ F_2 = \frac{^{90}Sr/Ca\ \ tej}{^{90}Sr/Ca\ növény} = 0{,}13,$$

$$D\ F_2 = \frac{^{137}Cs/K\ \ tej}{^{137}Cs/K\ növény} = 2.$$

A fentiekből látható, hogy mig a ^{90}Sr-nek csak kis része megy tovább a tejbe, addig a ^{137}Cs a tejben feldusul.

Figyelembe véve a táplálkozási körülményeket, a napi tejtermék és egyéb élelmiszerfogyasztást, egy diszkriminációs faktorral megadhatjuk az emberi testbe került ^{90}Sr és ^{137}Cs aktivitását, a talajban mért aktivitáshoz viszonyitva. Eltérő táplálkozási körülmények miatt ez a diszkriminációs faktor földrajzi helyenként eltérést mutathat:

$$D\ F_{összes} = \frac{^{90}Sr/Ca\ csont}{^{90}Sr/Ca\ talaj} = 0{,}076,$$

$$D\ F_{összes} = \frac{^{137}Cs/K\ testben}{^{137}Cs/K\ talaj} = 0{,}03.$$

Látható tehát, hogy a talaj a környezeti radioaktivitást megszabó tényezők közül a legfontosabb. Elérhetjük, hogy a talaj radioaktiv szennyezettségét csökkentve, a biológiai körfolyamatba minél kevesebb radioaktiv szennyezőanyag kerüljön.

MÉRÉSI MÓDSZER

A vizsgált területen, különböző talajtipusokon, meghatározott mélységből mintát vettünk. Általában 10-15 mérési pont mintáiból készitettünk átlagmintát. Fontos, hogy a mintavétel ugy történjen, hogy ne növelje a mérések összhibáját.

100 g mintából, megfelelő előkészitése után /száritás, növényi anyagok eltávolitása/, az IAEA standard módszerével, azaz sósavas extrakcióval végeztük az Sr leválasztását. Standard minták mérésével, alacsony hátterü antikoincidencia számlálóberendezéssel határoztuk meg az aktivitást.

A mérési idő 1 óra, a közepes mérési hiba 15 %, a Sr elválasztásának a kémiai hatásfoka 86 % volt.

A mérési módszer lehetővé teszi, hogy a kapott adatokat a nemzetközi irodalomban található adatokkal összehasonlithassuk.

A több éven át tartó vizsgálatok adatait az 1. táblázat tartalmazza.

1. táblázat

Adatok a ^{90}Sr megkötődésére és mozgására a különböző talajokban

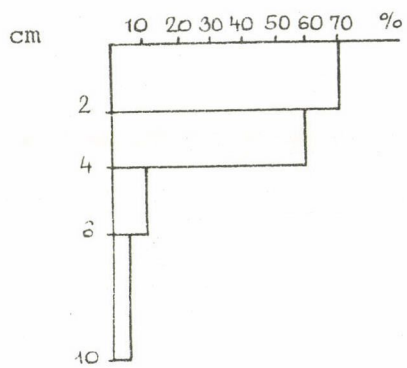
hely	mintavétel cm	pCi/kg 1965	1966	1967
1.	0-5	950	870	610
	5-10	41		45
2.	0-5	690	465	380
	5-10	76		
3.	0-5	470	345	370
	5-10	124		51
4.	0-5	190	145	120
	5-10			90
5.	0-5	310	260	280
6.	0-5	570	380	420
	10-20	82		
7.	0-5	240	220	195
8.	0-5	470	340	245
	40-50		92	

A táblázat adataiból az alábbi következtetések vonhatók le:

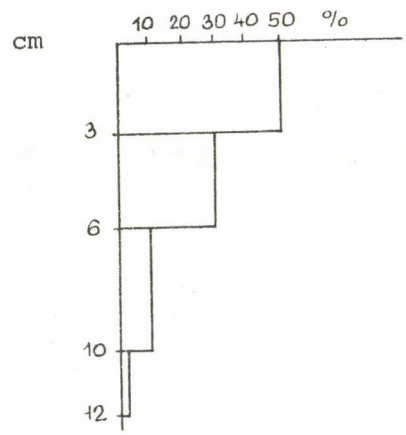
Az 1965 évi adatokból látható, hogy a 0-5 cm-es réteg aktivitása a döntő a talajok radioaktiv szennyezettségének a megállapitásában.

- Az 1. mintavételi helynél /Apaj/ a 4 éves periódus alatt a ^{90}Sr alsóbb rétegekbe történő mozgása sokkal kisebb mértékü, mivel a talaj kötött szerkezetü. Az azonos helyről származó laza szerkezetü, homokos talaj sokkal gyorsabb beszivárgást tesz lehetővé /2., 3. sz. minta/. Itt a ^{90}Sr megkötődés kisebb mértékü, és a felső szint aktivitása az évek során csökkent.
- Kismértékü csökkenést találunk a 6. sz. kötött talajon, mig a 8. /Besenyszög/ mintánál jelentősen csökkent az aktivitás, mivel a területet többször vizzel árasztották el, és igy az alsóbb rétegekbe is lemosódott a radioaktiv szennyeződés.
- Szántott talajoknál /4., 5., 7 sz. minták/ egyenletes ^{90}Sr eloszlást tapasztaltunk a szántott rétegben és a mechanikai összetétel függvényében; itt is látható kisebb vagy nagyobb ^{90}Sr mozgás lefelé.

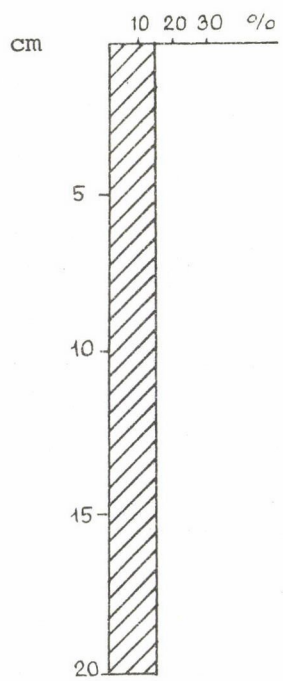
Az ^{90}Sr megkötődésének és a talajban való felhalmozódásának a különböző módjait az 1. ábra mutatja be.



kötött, agyagos talaj
nem müvelt területek, rétek



laza, homokos talaj
nem müvelt területek, rétek



Szántott terület

1. ábra

Az ^{90}Sr megkötődése különböző talajokon

Tehát egy adott terület radioaktiv szennyezettségének a csökkenése az idő és a mechanikai összetétel függvénye.

Kötött talajokon lassu ez a folyamat, mivel a vizgazdálkodási viszonyok is rosszabbak, igy lassu a lefelé való vizmozgás és a radioaktiv anyagok kilugozása is.

Laza, homokos szerkezetü talajoknál ez a folyamat gyorsabb, az esőviz hatására a radioaktiv szennyeződés fokozatosan a mélyebb rétegekbe kerül.

Az összes adatokat egybevetve megállapitható, hogy a ^{90}Sr mennyisége csökkenő tendenciát mutat 1964-68 között. Ez azzal magyarázható, hogy 1965 óta az ujabb radioaktiv szennyeződés mértéke erősen lecsökkent.

Az országos felmérés követelményeinek megfelelően, 34 mintavételi helyről talajmintákat gyüjtöttünk be, és meghatároztuk a ^{90}Sr szennyeződés értékét.

Meghatároztuk a ^{90}Sr aktivitás és a talaj Ca-tartalmának a viszonyát. Az ilymódon végzett kiértékeléssel a növények számára felvehető radioaktiv szennyeződés mértékére egy mutatószámot kapunk. A mérési adatokat a 2. táblázat tartalmazza.

A különböző helyeken a talajokban mért $^{90}Sr/gCa$ értékeket a 2. ábra szemlélteti.



2. ábra

A talajfelszin ^{90}Sr szennyezettsége az ország különböző pontjain

2. táblázat

A talajok ^{90}Sr szennyezettsége az ország különböző pontjain 1970. évben

h e l y	pCi/kg	Ca g/kg	pCi/g Ca	mCi/km^2
Tura	140	0,88	160	47
Kisbér	175	2,24	78	57
Kesztölc	180	1,60	112	58
Albertirsa	165	1,50	110	52
Nagyoroszi	185	1,92	96	59
Győr kertészet	185	1,68	110	56
Abda legelő	320	1,76	182	60
M.Óvár kertészet	175	1,02	171	57
M.Óvár legelő	360	3,00	120	52
M.Szt.János legelő	310	2,08	149	54
Sopron	170	1,60	106	56
Kópháza legelő	260	1,28	202	48
Szombathely	165	0,90	183	50
Zanat legelő	280	1,84	152	45
Háromfa	160	1,45	110	46
Somogyszob	138	1,16	118	42
Görcsöny	145	1,62	89	44
Vizvár	154	1,10	136	44
Balatonmogyoród	175	1,82	96	50
Gyoma	185	1,42	130	56
Vésztő	210	1,36	149	60
Battonya	203	1,60	144	58
Deszk	220	1,04	212	62
Balotaszállás	215	1,00	215	60
Báránd	220	1,80	122	60
Mátészalka	220	1,12	196	60
Nagykálló	180	1,00	180	55
Hajduhadház	195	0,82	238	54
Hortobágy	290	1,38	210	54
Kisujszállás	220	1,92	115	58
Tiszafüred	250	1,58	158	61
Kunmadaras	240	1,32	182	61
Jászberény	210	1,18	178	60
Tószeg	180	1,14	157	58

Az adatok alapján a $^{90}Sr/Ca$ arány szerint a vizsgált területeket 4 csoportra oszthatjuk:

1. $^{90}Sr/Ca$: $\angle$ 100 pCi/gCa
2. $^{90}Sr/Ca$: 100-150 pCi/gCa
3. $^{90}Sr/Ca$: 150-200 pCi/gCa
4. $^{90}Sr/Ca$: $\geq$ 200 pCi/gCa

A vizsgált területek közül kevés tartozik az 1. és a 4. csoportba. A legtöbb a 2. és 3. csoportba sorolható. A mCi/km^2-ben kiszámitott adatokból látható, hogy az ország területén nagy eltérések nincsenek. A fallout-aktivitás ingadozása nem volt hatással a talajban akkumulálódott radioaktiv anyag mennyiségére. Az évi ingadozás a talajoknál kiegyenlitődött. Az átlagos ^{90}Sr szennyeződés 45-62 mCi/km^2 értékünek adódott. Ezek az értékek a hasonló földrajzi szélesség alatt fekvő országokban mért adatokkal összhangban vannak /C.N.B.N. report 1969/ [4].

Nem látszik összefüggés az évi csapadék mennyisége és a talajban akkumulálódott ^{90}Sr szennyeződés között. Az utóbbi években a ^{90}Sr mennyisége, közel állandó értéken van. A Kárpát-medence meteorológiai viszonyai és földrajzi fekvése szélsőséges értékeket nem indokolnának.

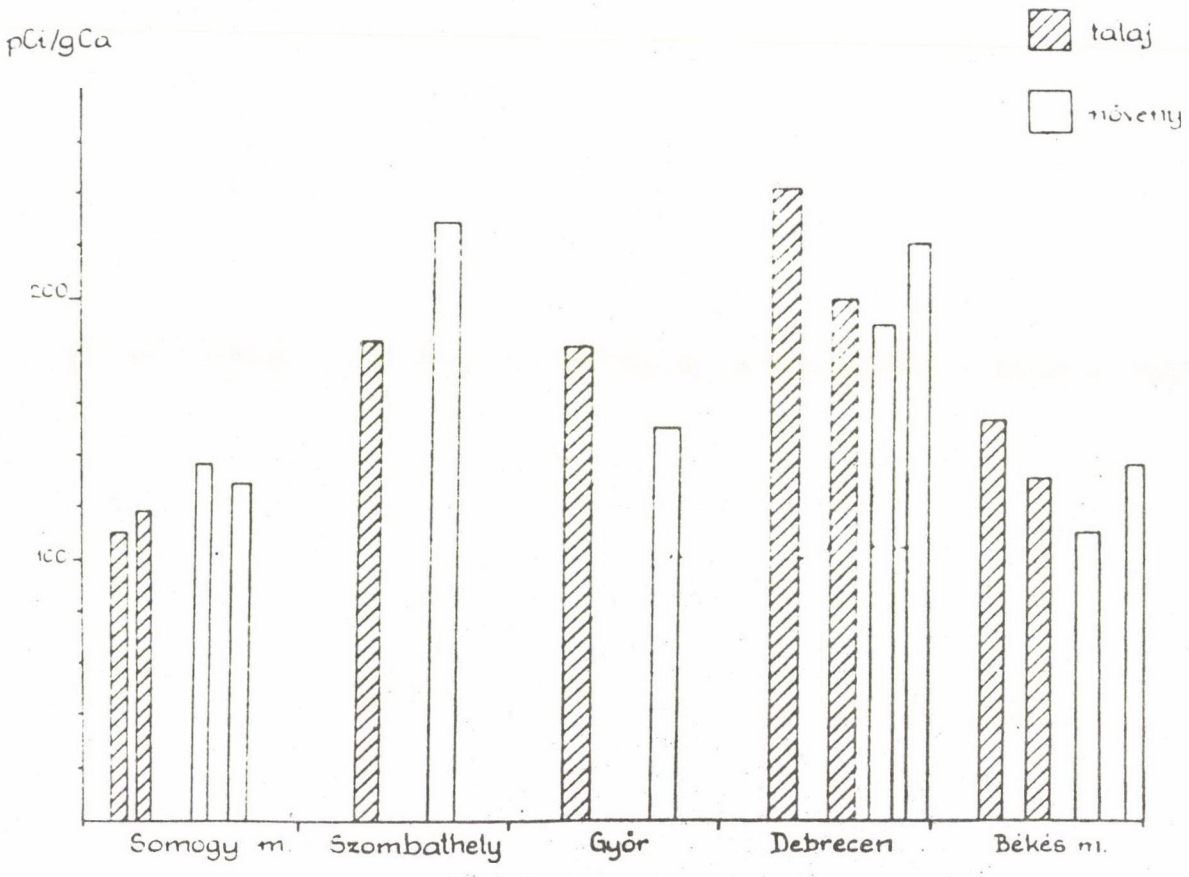
Az előzőekben ismertetett elv gyakorlati jelentőségét növeli az a tény, hogy egyre inkább növekszik az atomerőművek és radioaktiv izotópos munkahelyek száma. Ezzel együttjár az, hogy az ilyen izotópos kontaminációt előidéző objektumok környezetében mind nagyobb gondot kell forditani a talajfelszin és az ott termelt termékek radioaktiv szennyezettségének az ellenőrzésére.

Ez indokolja elsősorban, hogy a kialakult radioaktiv szennyezettségről információ álljon rendelkezésre, és ezek az információk olyan mérési módszerek eredményeiből származzanak, amelyek biztositják a kellő szinvonalu és egyértelmü értékelés követelményeit.

A növények (paraj) és a talaj radioaktiv szennyezettségi vizsgálataiból kitünik, hogy azonos területen a növény és a talaj radioaktivitása, a diszkriminációs faktor okozta eltéréstől eltekintve, azonos (3. ábra).

A diszkriminációs faktor talaj/növény viszonylatban 1, tehát a talajban meghatározott $^{90}Sr/Ca$ értékhez hasonló kontamináció várható a növényeknél is.

Különböző szennyezettségü talajok esetében tehát, megfelelő agrotechnikával, öntözéssel, kalciumadagolással elérhetjük, hogy a radioaktiv szennyező anyagok a biológiai körfolyamatba egyre kisebb mennyiségben kapcsolódjanak be. A talajból a növényzetbe, ezáltal az élelmiszerekbe továbbjutó radioaktiv szennyezettség értéke igy befolyásolható.



3. ábra

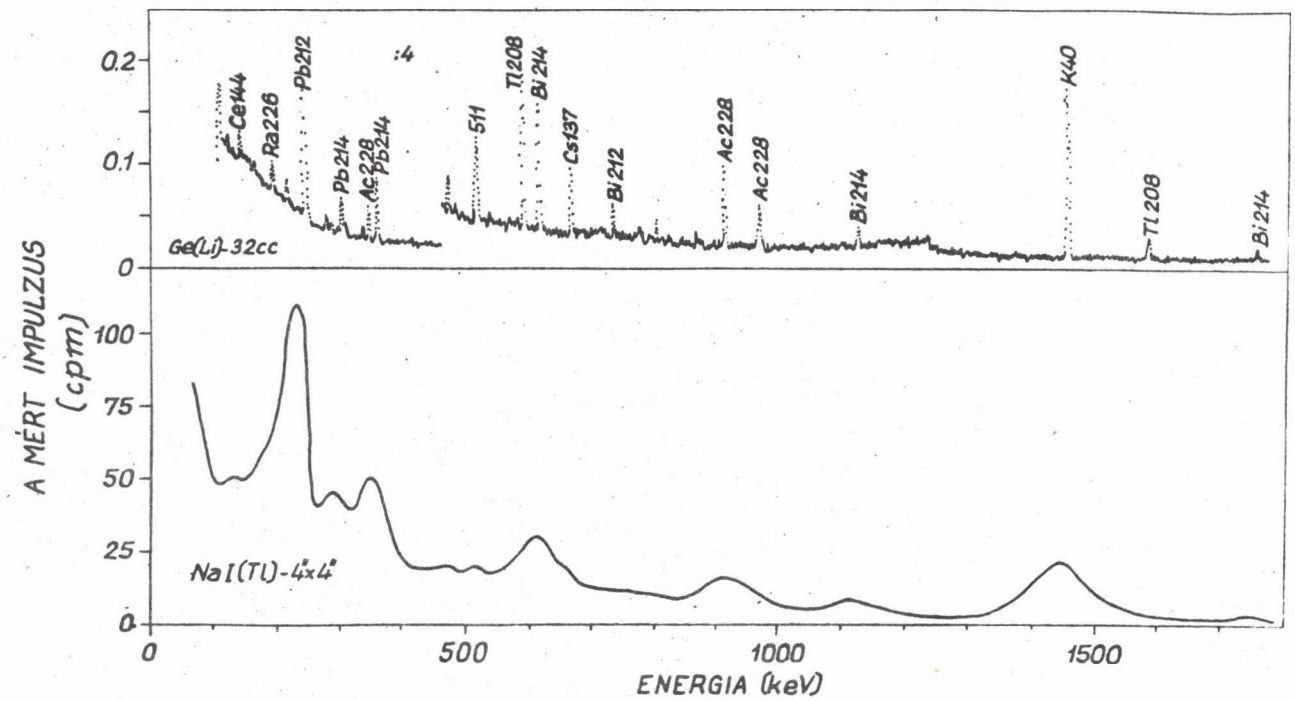
Az azonos területről származó talaj- és növényminták ^{90}Sr szennyezettsége

Az országos felmérés talajradioaktivitás-adatai alapján megállapitott különböző szennyezettségi fokozatok is azt bizonyitják, hogy a módszer alkalmas a talajban mért radioaktivitás és a növények radioaktivitása közötti összefüggések vizsgálatára.

A talajban lévő γ -sugárzó radioaktiv szennyező anyagok meghatározására kiválóan alkalmazható a Ge/Li/ félvezetődetektoros méréstechnika. A talajminták ^{137}Cs tartalmának mérését minden különösebb előkészités nélkül megoldhatjuk és egy méréssel az összes jelenlévő γ -sugárzó szennyező anyag meghatározható. A 4. sz. ábra egy talajminta spektrumát mutatja be NaI és Ge/Li/ detektorral felvéve[5].

A környezeti radioaktivitás és következményei megitélésében igen fontos szerepe van a talaj radioaktiv szennyezettsége ismeretének.

Ennek megfelelően, a talaj radioaktiv szennyezettségének az ismerete, az emberre háruló külső sugárterhelés tényezőjén tulmenően olyan paraméter, amely az élelmiszergazdaság egyéb területén a várható radioaktiv kontamináció számitásához is megfelelő bázis-adatokat szolgáltat.



4. ábra

Talajminta γ-spektruma

IRODALOM

1. Клечковский, У.М., Гулякин, И.В., Почвоведение 3 121 /1958/
2. *Duhamel Francis A.M.*, Progress in Nuclear Energy Series XII. Pergamon Press /1969/
3. *Frédriksson L.-Eriksson A.*, Försvarets Forskningsanstalt. /F.O.A./ rapport A 4457. /1965/
4. C.N. E.N. report Collected data of environmental radioactivity in Italy Róma. /1969/
5. *Bagliano G., Fratarcangeli S., Lalli G., Török I.*, La misura del Cs-137 e dello Sr-90 nei terreni, C.N.E.N. RT/PROT/ 72/11.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 1. szám

MÓDOSITÁSOK AZ MI-1305 TIPUSU TÖMEGSPEKTROMÉTEREN

Varga Gy. és Beczner K.
MTA Talajtani és Agrokémiai Kutató Intézet, Budapest

Az MI-1305 tipusu, szovjet gyártmányu tömegspektrométer alkalmassá tétele kis mennyiségü nitrogén minták ^{15}N izotóparányának rutinszerü mérésére

Изменения, внесенные в масс-спектрометр типа МИ-1305
Варга Д., Бецнер К.

Изменение советского масс-спектрометра МИ-1305 с целью осуществления на нем серийных измерений содержания ^{15}N в малых пробах азота.

Modifications in MI-1305 Type Mass Spectrometer
Varga, Gy., Beczner, K.

How to make MI-1305 type mass spectrometer /made in USSR/ suitable for the routine measurements of ^{15}N abundance in small nitrogen samples.

Az MI-13o5 tipusu szovjet tömegspektrométert 1964 óta alkalmazzuk ^{15}N indikációs kisérleteinkben a nitrogén izotópösszetételének meghatározására. Az eltelt időszak tulnyomó részében olyan növénymintákat analizáltunk, amelyek nagy nitrogéntartalma és magas ^{15}N atom %-a lehetővé tették a tömegspektrométer eredeti vákuum- és mintaadagolórendszerének a gyakorlatilag módositás nélküli alkalmazását. Az analiziseket azonban a vákuumrendszer elégtelenségei miatt már ebben az időszakban sem lehetett minden nehézség nélkül elvégezni. Ha ugyanis a készülék huzamosabb ideig állt, az analizátorkamra és a ballon - a nagy vákuumszelepek kónuszainak elégtelen zárása miatt - fokozatosan telitődtek levegővel. A kamrába és az ionforrásba jutott gázok ott adszorbeálódtak. Mennyiségüket csak több napos üzemeltetéssel és kályházással lehetett a mérések szempontjából megengedhető szintre csökkenteni. Az analizátor nagyvákuumának eléréséhez azonban még rendszeres müködtetés esetén is 4-6 órára volt szükség, de tartósan és megbizhatóan még igy sem mindig lehetett fenntartani. Ezt elsősorban az okozta, hogy az eredeti készülékben a kamra , az ionforrás és a mintaadagoló elő- és nagyvákuumrend-

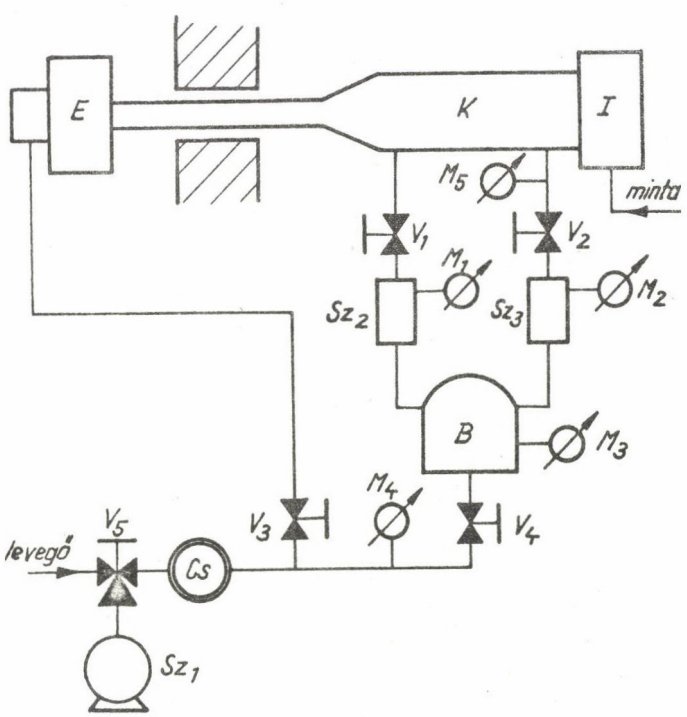
szere közös volt, amely ennek következtében sok fémmembrános szelepet tartalmazott. A szelepek gyakori nyitása és zárása miatt - a fémmembránok kifáradása folytán - a vákuumrendszer sorozatosan meghibásodott. A gyakori leállások és javitások következtében a kamra, az ionforrás vákuumcsapdái, a diffuziószivattyukban levő higany, valamint a ballon elszennyeződtek. Évenként több alkalommal tisztitásra szorultak.

Az MI-13o5 vákuumrendszerét illetően hasonló tapasztalatokról számoltak be más szerzők is[3,5], akik emiatt a vákuumrendszert igényeiknek megfelelően módositották.

Mi az eredeti vákuumrendszer módositását akkor végeztük el, amikor kisérleteinkhez kis mennyiségü /1 mg alatti/, alacsony ^{15}N atom %-u /o,5 atom % ^{15}N körüli/ nitrogén gázminták izotóparányának mérése is szükségessé vált. Erre az eredeti MI-13o5 tömegspektrométer, vákuum-, adagoló-, és kollektorrendszerének a módositása nélkül nem alkalmas.

A VÁKUUM- ÉS MINTAADAGOLÓRENDSZER MÓDOSITÁSA

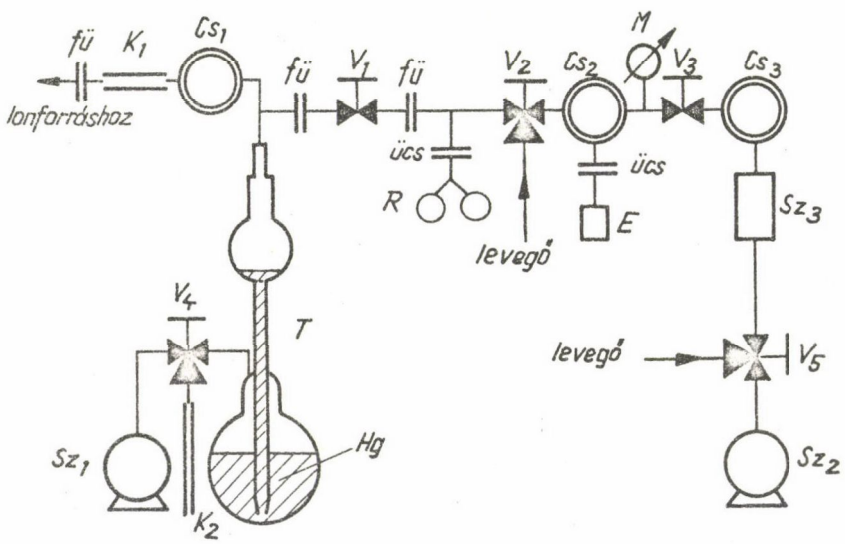
Az eredeti vákuum- és mintaadagolórendszert az 1., 2. ábrák szerinti sémának megfelelően módositottuk. Az ábrákból látható, hogy a tömegspektrométer vákuumrendszerét a mintaelőkészitő- és az adagolórendszertől függetlenitettük, és hogy a mintaelőkészitő- és az adagolórendszer egy közös egységet képez. Ennek ismert előnyeiről nem kell külön szólnunk. Emellett az analizátorkamra és az ionforrás vákuumrendszerébe /1. ábra/ a Szovjetunióból beszerezhető - az MI-13o5 tipusu tömegspektrométerhez illeszthető - fémharmónikás szelepeket /V_1 - V_4/ szereltünk be, és a V_1, V_2 szelepeket teflon kó-



1. ábra

A tömegspektrométer módositott vákuumrendszere.
B. Ballon
Cs. Kifagyasztó csapda
E. Elektrométer
I. Ionforrás
K. Analizátor kamra
M_1,M_2. Ionizációs vákuummérő
M_3,M_4. Termoelemes vákuummérő
M_5. Ionizációs vákuumrelé
Sz_1. Rotációs szivattyu
V_1-V_4. Fémharmonikás szelep
V_5. Üveg vákuumcsap

nusszal láttuk el. A módositott vákuumrendszerrel a kamra csak a ballonon keresztül szivatható le /az MI-13o5-höz illeszthető V_1 tipusu szelep leszivó csonk nélkül készül!/, amelyen szükség esetén változtatni lehet. Pl. ugy, hogy az M_5 és V_2 közé egy leszivócsonkot, a V_3 és V_4 közé egy ujabb, azonos tipusu szelepet szerelünk fel. Az Sz_2 és Sz_3 diffuziószivattyuk csapdáit - a többek között Móger és Mink[3] által is ismertetett elven müködő - automatikus cseppfolyóslevegő-utántöltő berendezéssel láttuk el. A V_5 csap és a jól záró V_1-V_4 szelepek következtében a vákuum alatt tartott egységek hosszas állás után sem levegőznek be. A szükséges nagyvákuum az üzembehelyezést követően 2-3 óra alatt elérhető és biztonságosan fenntartható. Az ismertetett vákuumrendszer az elmult két év alatt kifogástalanul, meghibásodás nélkül müködött. A vákuumrendszer könnyen áttekinthető, kezelése ezért egyszerü és biztonságos.



2. ábra

A mintaelőkészitő- és adagolórendszer sémája.
Cs_1-Cs_3. Kifagyasztó csapda
E. Kondenzátum-felfogó edény
fü. Fém-üveg csatlakozás
K_1-K_2. Kapilláris
M. Termoelemes vákuummérő
R. Rittenberger-edény.
Sz_1-Sz_2. Rotációs szivatytyu
Sz_3. Üveg Hg-diffuziós szivattyu
T. Töpler-pumpa
ücs. Üvegcsiszolat
V_1. Teflonbetétes fémharmónikás szelep
V_2-V_5. Üveg vákuumcsapok.

A 2. ábra a mintaelőkészitő- és adagolórendszert mutatja. A mintaelőkészités a *Bremner* által összegezett és részben módositott eljárás szerint, ammóniumszulfáttartalmu vizes oldatok nátriumhipobromidos oxidációja utján történik[1]. A mintaelőkészitő rendszer az e feladatok elvégzéséhez szükséges elemeket tartalmazza olyan megoldásban, hogy a gázmintát egy munkamenetben, gyorsan, megbizhatóan, a szennyeződési lehetőségek csaknem teljes kizárásával lehessen előállitani. Az adagolórendszer főbb elemei a K_1 kapilláris és a Töpler-pumpa. A K_1 kapilláris tapasztalati uton ugy van méretezve, hogy a Töpler-pumpa teljes térfogatát /$\sim$ 6oo ml/ kihasználva 11,o ^{15}N atom %-os, 1 mg N_2-nek megfelelő gázmennyiség esetén a 28-as tömegszámu ionok intenzitása legalább 25 V legyen, és a kiértékelés ideje alatt sem ez az

ionintenzitás, sem a 28/29 tömegszámu ionok intenzitásának aránya számottevően ne változzék.

A Töpler-pumpa viszonylag nagy térfogata és kiképzése kettős célt szolgál:

1. A 6oo ml térfogat lehetővé teszi, hogy szükséges esetekben (1 mg N_2 alatt) a V_1, V_2 és az R által bezárt mintaelőkészitő térből az oxidáció utján kapott gázminta 95%-át az adagolótérbe juttathassuk.

2. A K_2 kapilláris mellett a térfogatviszonyaira nézve összesen négy fokozatu (1:3, 1:1o, 1:1oo) Töpler-pumpa is elősegiti, 1 mg alatti nitrogénmennyiségek esetén, a szükséges nyomásértékek gyors és megbizható beállitását. A Töpler-pumpa egyes fokozataiban a Hg-szint 1 mm-es emelésére bekövetkező térfogatváltozások ml-ben: o,o1; o,2; o,5 és $\sim$ 5,6.

Az adagolótérbe juttatott gázminta nyomásának beállitása és a minta lemérése alatt az előkészitőrendszeren egy ujabb minta készithető elő. Az el nem használt gázminta az adagolótérből a V_1, V_2 és V_3 szelepek nyitása és a Töpler-pumpa egyidejü müködtetése utján 3o-6o másodperc alatt eltávolitható.

EGYÉB MÓDOSITÁSOK

Az ionforrás o,o75 mm-es kilépőrését az ionintenzitás növelése érdekében o,1 mm-es résre cseréltük ki.

A kollektoregységbe a MTA Központi Fizikai Kutató Intézete által készitett olyan uj résrendszert szereltünk be, amely a 28 és 29 tömegszám leképzésének megfelelő távolságra állitható. Az uj résrendszerrel a készülék kompenzációs mérőhidja használhatóvá vált, ami a nagyobb mérési pontosság biztositása mellett, az ionintenzitások időbeli változásából eredő hibalehetőséget is kizárja.

A MINTÁK SZENNYEZETTSÉGÉNEK ELLENŐRZÉSE

Az agrokémiai-talajtani ^{15}N indikációs kisérletekben az izotóparány mérését sok esetben kell tized mg-nyi nitrogénnek megfelelő gázmennyiségekből elvégezni. Ilyen esetekben a Bremner által leirt mintaelőkészitést és a 2. ábrán bemutatott mintaelőkészitő rendszert használva is előfordulhat, hogy a vizsgálandó minta több-kevesebb levegővel szennyeződik. A levegővel szennyezett minták mérési eredményeit az ismert módszerek valamelyike szerint korrigálni kell[1,2,4]. Mi a szükséges korrekciót a 32 tömegszámu oxigén ionok intenzitása alapján számitjuk. A korrekció elvégzésének természetesen az a feltétele, hogy a 32-es a 4o tömegszámu ionok intenzitásának arányai a levegőre és a vizsgált mintára vonatkozóan megfelelőek legyenek. Az MI-13o5 tömegspektrométerrel mérve a 28(N_2) és a 32(O_2) tömegszámu ionok intenzitásának

aránya a levegőre vonatkozóan 6,48. Ennek megfelelően levegővel való szennyezettség esetén a vizsgált mintában mért 28-as tömegszámu ionok intenzitását az I(28) - I'(28) összefüggés szerint korrigálni kell, ahol $I'(28) = 6,48 \cdot I(32)_{minta}$. Az ismertetett előkészitő rendszerrel nyert mintáink általában 1,0%-nál kevesebb levegőt tartalmaznak. Az 1%-nál több levegőt tartalmazó gázminták nagyon ritkák és a 3%-nyi levegőt tartalmazó mintákra korrekciót már nem számitunk, hanem azok helyett uj mintát készitünk.

Az eddig vizsgált gázminták szennyezettségének ellenőrzése során a NaOBr bomlásából eredő oxigént nem tudtunk kimutatni. N-oxid azonban, a NaOBr-os oxidációnál, több-kevesebb mennyiségben mindig keletkezett, amelyet jól mutatott az a tény, hogy a K_1 kapilláris kifagyasztása nélkül a 44,45 tömegszámu ionok intenzitásának aránya megegyezett a vizsgált minta 28, 29 tömegszámu ionjai intenzitásának arányával[2]. A N-oxidok a K_1 kapilláris cseppfolyós levegővel történő hütésével kifagyaszthatók.

ÖSSZEFOGLALÁS

Az MI-13o5 tipusu szovjet tömegspektrométer vákuum- és mintaadagolórendszerét, valamint a kollektor-egység réseit módositottuk azzal a céllal, hogy az viszonylag kis mennyiségü nitrogén gázminta izotóparányának a rutinszerü mérésére is alkalmas legyen.

A módositás lényege:

a/ A tömegspektrométer és a mintaadagoló eredetileg közös vákuumrendszerét függetlenitettük egymástól, és az uj vákuumrendszerben teflonkónusszal ellátott fémharmónikás szelepeket alkalmaztunk.

b/ Olyan uj mintaelőkészitő és adagoló rendszert terveztünk és épitettünk meg, amellyel loo µg N_2-nek megfelelő gázmennyiségig végezhetünk, azonos feltételek mellett, rutinszerü izotóparány méréseket.

A módositás előnyei:

a/ Az analizishez szükséges nagyvákuum az üzembehelyezést követő 2-3 óra alatt elérhető és biztonságosan fenntartható.

b/ Egy minta analiziséhez a korábbi 2-4 mg N_2 helyett o,1 mg N_2 is elegendő.

c/ Az uj előkészitőrendszerrel levegő-korrekció számitására csak ritkán van szükség, mivel a minták szennyezettsége a legtöbb esetben elhanyagolható.

IRODALOM

1. *Black, C.A.*, Methods of soil analysis, Part 2. Agronomy 9 1256-1286 /1965/
2. *Capindale, J.B., Tomlin, D.H.*, Nature 180 701-702 /1957/
3. *Móger D., Mink Gy.*, Magy. Kém. Folyóirat 74 6. 245 /1968/
4. *Sims, A.P., Cocking, E.C.*, Nature 181 474. /1958/
5. Зерналов, В.В., Агрохимия 9 76-81 /1968/

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 1. szám

RADIONUKLID GENERÁTOROK ORVOSI FELHASZNÁLÁSÁNAK FARMAKOLÓGIAI PROBLÉMÁI

Pál I.

MTA Izotóp Intézete, Budapest

A rövid felezési idejü nuklidok előnyei. A generátor szerkezete. Különféle generátorok. A leányelemből készithető farmakonok.

Фармакологические проблемы использования генераторов радионуклидов
Пал И.

Преимущества короткоживущих нуклидов. Построение генераторов. Разные типы генераторов. Фармацевтические соединения дочерных элементов.

Pharmacological Problems in the Use of Isotope Cows
Pál I.

Advantages of short-lived nuclides. Construction of the cows. Various types of cows. Pharmaceutical compounds of the daughter elements.

Az orvosi gyakorlatban az utóbbi években mindinkább tért hóditanak a rövid felezési idejü radionuklidok. Ennek magyarázata abban keresendő, hogy a klinikai vizsgálatok során

a/ rövid felezési idejü nuklidokkal olyan radioaktiv gyógyszerek készithetők, amelyek segitségével fontos diagnosztikai információkat kaphatunk;

b/ a vizsgálatok során keletkező szekrétum - amelynek felszámolása az izotópdiagnosztikai módszerek elterjedésével problémaként jelentkezik - néhány órás vagy napos "hütés" után, gyakorlatilag inaktivként kezelhető;

c/ a rövid felezési idejü nuklidok segitségével a beteget és a környezetét érő sugárdózis jelentősen csökkenthető.

A rövid felezési idejü nuklidok elterjedését azonban bizonyos mértékig gátolja az a körülmény, hogy nagyobb távolságra nem szállithatók, ezért csak az előállitás helyén használhatók fel. Ez a nehézség olyan esetekben hidalható át, amikor az illető nuklid megfelelően hosszu felezési idejü nuklidból

leányelemként keletkezik. Ebben az esetben ugyanis, minthogy a radioaktiv egyensuly beállása után a radioaktiv rendszer gyakorlatilag az anyaelem felezési idejének megfelelően csökken, készithető olyan berendezés, un. radionuklid generátor, amely az illető nuklidot anyaelemével együtt tartalmazza. A generátorrendszerből kapott leányelem a következő szempontok szerint osztályozható:

fizikai felezési idő /2,6 min - 64 h/;
a sugárzás tipusa, energiája /γ: 0,03 - 1,78 MeV/;
fajlagos aktivitás /hordozómentes/;
radioaktiv koncentráció /0,1 mCi/ml - 1 Ci/ml/;
az elem kémiai tulajdonságai / pl. fémes, nem fémes/;
radionuklid-tisztaság /min. 99,99 %/;
radiokémiai tisztaság /min. 95 %/.

Az anyaelemmel szemben támasztott követelmények: egyszerü előállitás, nagy aktivitás, nagy radionuklid-tisztaság, hosszu felezési idő.

A LEÁNYELEM ELVÁLASZTÁSA AZ ANYAELEMTŐL

A kémiai elválasztás azon alapul, hogy az anya- és a leányelem különböző kémiai elem. Az elválasztással szemben a következő követelményeket támasztjuk: az elválasztás gyors és egyszerü legyen; többször ismételt elválasztás esetén is nagy radionuklid-tisztasággal kaphassuk meg a leányelemet, olyan kémiai formában, amelyből kiindulva különféle kémiai vegyületek egyszerü módszerrel készithetők; az elválasztás hozama maximális legyen, nagy radioaktiv koncentráció mellett; az elválasztás legyen érzéketlen a paraméterek kismértékü megváltozására /hő, elválasztási sebesség/.

A kémiai elválasztások közül a következők emlithetők meg: együttlevválasztás, szürés, extrakció, desztilláció /szublimáció/, ioncserés kromatográfia. A radionuklid generátoroknál a kromatográfiás ioncserélő oszlopokat használják a leggyakrabban.

KROMATOGRÁFIÁS OSZLOPOK

A kromatográfiás módszer szerint az anyaelemet szervetlen vagy szerves adszorbenshez rögzitik, és a leányelemet oldattal eluálják. Az adszorbensek iránti követelmények közül az ionkapacitást és a kémiai sugárállóságot kell kiemelni. Adszorbensek a következőképpen csoportosithatók /zárójelben az elválasztandó elemek szerepelnek/:

a/ szerves ioncserélő gyanták:
anioncserélő gyanta /pl. ^{87}Y - $^{87}Sr^{m}$/;
kationcserélő gyanta /^{28}Mg - ^{28}Al/;
komplexcserélő gyanta /^{113}Sn - $^{113}In^{m}$, ^{115}Cd - $^{115}In^{m}$/;

b/ szervetlen adszorbensek /nagy sugárstabilitásuak/:
Al_2O_3 /^{132}Te - ^{132}I, ^{99}Mo - $^{99}Tc^m$, ^{68}Ge - ^{68}Ga/;
hidrált cirkóniumoxid /^{113}Sn - $^{113}In^m$/;
Fe_2O_3 /^{99}Mo - $^{99}Tc^m$/;
MnO_2 /^{99}Mo - $^{99}Tc^m$/;
szilika-gél /^{113}Sn - $^{113}In^m$/.

A RADIONUKLID GENERÁTOR SZERKEZETE

Az anyaelem adszorbeálására használt ioncserélő gyanta kis átmérőjü üvegoszlopban helyezkedik el, két, kis porozitásu szürő között. A szürő feladata az oszlop állandóságának biztositása és az adszorbens visszatartása az eluátumból. Az adszorbens térfogata az ionkapacitástól függ, igy hordozómentes anyaelem esetén csak egy-két cm^3. Az ioncserélő oszlop steril generátor esetén olyan zárt rendszer, amely több hónapon keresztül sterilitást is biztosit. A kezelőszemélyzet sugárterhelésének csökkentésére megfelelő vastagságu ólomvédelemmel látják el az ioncserélő oszlopot.

A GYAKORLATBAN HASZNÁLATOS RADIONUKLID GENERÁTOROK

A ^{132}I-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{132}Te \xrightarrow[3,2\ d]{\beta^-,\ \gamma} {}^{132}I \xrightarrow[2,3\ h]{\beta^-,\ \gamma} {}^{132}Xe$$

Ez az első mesterséges radionuklid generátor, amely kereskedelmi forgalomba került. A ^{132}Te-t uránhasadványból nyerik. Az Al_2O_3 oszlopon adszorbeált $NaTeO_4$ mellől a ^{132}I leányelemet 0,01 M NH_4OH-dal választják el.

^{132}Te-szennyezés: 10^{-3}%; a hasadványból eredő más radionuklid szennyezők a ^{131}Te, ^{131}I, ^{99}Mo, $^{99}Tc^m$; a nuklid pajzsmirigy-diagnosztikára, placentográfiára, plazmatérfogat meghatározására, cirkulográfiára stb. használható.

Használata az utóbbi években csökkenő tendenciát mutat.

A ^{68}Ga-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{68}Ge \xrightarrow[280\ d]{EC} {}^{68}Ga \xrightarrow[68\ m]{\beta^-,\ EC} {}^{68}Zn$$

A ^{68}Ga-generátor használata a gyors scannerek és főként a szcintillációs kamerák /pozitronkamera/ használatával terjedt el. A ciklotronban előállitott ^{68}Ge-ot ionos formában Al_2O_3 oszlopon adszorbeálják, és a ^{68}Ga-ot 0,005 M Na_2-EDTA-val eluálják. A ^{68}Ga-EDTA eluátum, sterilizálás után, agytumor szcintigráfiájára alkalmas.

Radioaktiv gyógyszerek előállításához a ^{68}Ga-EDTA komplexből a $^{68}Ga^{3+}$ iont 7,5 normál HCl-es közegben diizopropil-éterrel vagy hordozó Ga hozzáadásával, kicserélődési reakcióval elválasztják. A $^{68}GaCl_3$ oldatból kolloid, makroaggregát állitható elő. Ez esetben csak az első módszerrel elválasztott $^{68}GaCl_3$ használható. A másik módszerrel csontszcintigráfiás célokra ^{68}Ga-citrát állitható elő.

A $^{87}Sr^m$-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{87}Y \xrightarrow[80\ h]{EC,\ \gamma} {}^{87}Sr^m \xrightarrow[2,8\ h]{\gamma} {}^{87}Sr$$

A generátorrendszerből nyerhető $^{87}Sr^m$ a ^{85}Sr-hoz viszonyitva kedvező tulajdonságokat mutat: γ-energiája 388 keV, felezési ideje 2,8 h.

Az anyaelem előállitása a következő magreakciókkal történik:

$$^{85}Rb/\alpha,\ 2n/^{87}Y,$$

$$^{87}Sr/p\ ,\ n/^{87}Y.$$

A ^{87}Y anyaelemet anioncserélő szerves gyantán /Dowex-1, IRA 400, Amberlite CG 400/ adszorbeálják, és a $^{87}Sr^m$-ot 0,005 % citromsavval eluálják. A $^{87}Sr^m$-citrat a csontszcintigráfiában eredményesen és kis sugárterheléssel alkalmazható.

A ^{90}Y-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{90}Sr \xrightarrow[28\ a]{\beta^-} {}^{90}Y \xrightarrow[64\ h]{\beta^-} {}^{90}Zr$$

A 2,25 MeV energiáju β-sugárzó ^{90}Y nuklidot az 50-es évek közepétől alkalmazzák pleurális és peritoneális effuzió besugárzására, kolloid formában. Az uránhasadványból nyert ^{90}Sr Dowex 50 gyantán megköthető, és a ^{90}Y 5,5 pH-ju citrátoldattal eluálható. A hordozómentes ^{90}Y-ot szolgáltató generátor használata nem terjedt el, mivel az anyaelem radiotoxicitása igen nagy.

A $^{99}Tc^m$-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{99}Mo \xrightarrow[67\ h]{\beta^-,\ \gamma} {}^{99}Tc^m \xrightarrow[6\ h]{\gamma} {}^{99}Tc$$

A radionuklid generátorok közül ez a legelterjedtebb. Ennek az az oka, hogy igen előnyös fizikai és kémiai tulajdonságai vannak.

A ^{99}Mo anyaelem felezési ideje 67 h. A generátor ellenőrzése kibocsájtás előtt lehetséges. Hátránya, hogy aktivitásától függően max. 10-15 napig használható.

A leányelem felezési ideje 6 h. Naponta egy eluálás végezhető. A radioaktiv gyógyszerek minőségi ellenőrzése a felhasználás előtt elvégezhető. Előnye a kis sugárterhelés és a nagy detektálási effektivitás. Megfelelő kollimátorrendszerek készithetők.

Különböző vegyérték mellett különböző vegyületek készitése lehetséges. Hátrányos, hogy a vegyérték redukáló, oxidáló anyagok hatására könnyen változik, igy a radiokémiai szennyezők mennyisége igen változó.

Az anyaelemet uránhasadványból a $^{98}Mo/n,\gamma/^{99}Mo$ magreakcióval állitják elő, természetes, ill, dusitott ^{98}Mo-ból.

A ^{99}Mo-t Al_2O_3 oszlopon adszorbeálják. A leányelemet steril generátorrendszerből, 0,9 % steril nátriumklorid oldattal eluálják, 60-70 %-os hatásfokkal. A $^{99}Tc^m$ ugy is előállitható, hogy Na $^{99}MoO_4$ nátrium-hidroxidos oldatából metil-etil-ketonnal extraháljuk. Az extrakciós hatásfok 90 %. Igy kis fajlagos aktivitásu ^{99}Mo használható, s nagy radioaktiv koncentrációju $^{99}Tc^mO_4$ állitható elő. Hátránya viszont, hogy frissen desztillált, redukálóanyagtól mentes ketont kell használnunk.

A leányelem elválasztásának harmadik lehetősége a desztilláció - szublimáció $^{99}MoO_3$-ból. A $^{99}Tc^m$ hozama kisebb, mint az extrakciónál, de nagy aktivitásmennyiségek állithatók elő, nagy radionuklid- és radiokémiai tisztasággal és nagy radioaktiv koncentrációban.

$^{99}Tc^m$-os radioaktiv gyógyszerek

$Na^{99}Tc^mO_4$, steril, 0,9 %-os NaCl oldatban

Felhasználási területe: agytumor, placenta, nyálmirigy és pajzsmirigy szcintigráfiája, keringési vizsgálatok.

$^{99}Tc^m$ kolloidok és mikroaggregátok; $^{99}Tc^m$ szulfidkolloidok; $^{99}Tc^mSn/OH/_4$ kolloid, $^{99}Tc^m$-HSA mikroaggregátum; $^{99}Tc^m$ gelatin, stb.

Farmakológiai problémát a kolloidméretek állandósága jelent. A retikulo-endoteliális rendszer kolloidfelvétele ui. a kolloidok méretétől és a szerv vérátáramlásától függ. A szemcseméret 20-5000 mμ-ig terjed. A szabad pertechnetát halmozódik a gyomorban, a vékonybélben, a májszcintigráfiát zavarja. A $^{99}Tc^mO_4^-$ halmozódása a pajzsmirigyben a beteg sugárterhelését növeli. A $^{99}Tc^m$ kolloid szabad $^{99}Tc^mO_4^-$ -tartalma ioncserével csökkenthető. Stabilizátorok használata a betegeknél kellemetlen mellékhatásokat válthat ki. Stabilizátorként zselatint, dextránt, polivinilpirrolidont, albumint, mannitolt stb. használnak. A WHO-IAEA ajánlása szerint $^{99}Tc^m$ kolloidoknál stabilizátorokat nem kell feltétlenül használni.

$^{99}Tc^m$ makroaggregátumok és mikrogömbök /$^{99}Tc^m$-HSA, MAA, $^{99}Tc^m$-$Fe/OH/_3$MAA, $^{99}Tc^m$-HSA mikrogömbök/

A $^{99}Tc^m$-HSA-MAA készitése igen bonyolult. A HSA mikrogömbök jelzése

egyszerübb, jól reprodukálható. Szemcseméretük állandósága jó tüdőszcintigramok készitését teszi lehetővé. A szemcseméretet minden gyártás alkalmával ellenőrizni kell. Tüdőszcintigráfiás célra 20-50 µm átlagos szemcseméret alkalmas. A készitmény 100 µm-nél nagyobb szemcsét nem tartalmazhat. A mikrogömbök szemcseméretét a $^{99}Tc^{m}$-jelzés előtt is ellenőrizhetjük.

E készitmények sem hővel, sem szüréssel nem sterilizálhatók. Steril alapanyagokból, steril körülmények között kell őket elkészitenünk. Stabilizátorokat a kolloidoknál leirtak szerint kell használni.

$^{99}Tc^{m}$-Fe-aszkorbát komplex

A $^{99}Tc^{m}O_4$-et Fe^{3+}-Fe^{2+}-aszkorbinsav rendszerben redukálják. A keletkezett komplex oxigén- és pH-érzékeny. A komplex egy része glomerulárisan filtrálódik, 50 %-a a szervezetben visszamarad.

$^{99}Tc^{m}$-DTPA komplex

Glomerulárisan filtrálódik, eloszlási tere az extracelluláris tér. Vesedinamikai vizsgálatokhoz, glomeruláris filtrációs ráta, extracelluláris tér meghatározásához alkalmas.

$^{99}Tc^{m}$-polifoszfát

A kis molekulasulyu pirofoszfáthoz kötött $^{99}Tc^{m}$ a csontban halmozódik. A nagy halmozási érték és a kis sugárterhelés miatt csontszcintigráfiára igen alkalmas.

A $^{99}Tc^{m}$-os radioaktiv gyógyszerek ellenőrző vizsgálata

A $^{99}Tc^{m}O_4^-$ eluátum radionuklid-tisztaságát minden uj generátor használatbavételekor kötelező ellenőrizni. Az ellenőrzést γ-spektroszkópiával és az un. "Pb-szürő" módszerrel végzik. A ^{99}Mo megengedhető koncentrációja max. 0,01 %.

A kémiai szennyezőket /Al és Mo elemek/ mikrokémiai szinreakcióval vagy emissziós spektroszkópiával mutatják ki. A többértékü kationok a $^{99}Tc^{m}$-os radioaktiv gyógyszerek készitését zavarják.

A radiokémiai szennyezők papirkromatográfiás, ill. elektroforézises módszerrel mutathatók ki.

A sterilitást és a pirogén anyagokat a végtermékekből gyógyszerkönyvi módszerekkel vizsgálják. Retrospektiv vizsgálatot havonta ajánlatos végezni. A gyógyszerkészitéshez felhasznált reagensek sterilitását és pirogenitását szériánként kell ellenőrizni.

Jelzési módszer kidolgozása esetén kisérleti állatokon ellenőrizendő a radioaktiv gyógyszerek szervaffinitása.

A $^{115}In^{m}$-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{115}Cd \xrightarrow[53\ h]{\beta^-,\ \gamma} {}^{115}In^{m} \xrightarrow[4,5\ h]{\beta^-,\ \gamma} {}^{115}In$$

Az első radioaktiv indiumgenerátort 1965-ben Törkő J. dolgozta ki. A ^{115}Cd reaktorban állitható elő, Cd-fólia termikus neutronokkal történő besugárzásával.

A ^{115}Cd klorokomplex Dowex-1 ioncserélő gyantán adszorbeálható, amelyről a $^{115}In^{m}$ klorokomplex 0,15 n sósavval naponta eluálható. Méréseink szerint az eluálás hatásfoka 90%. A hordozómentes $^{115}In^{m}Cl_3$ oldatból RES-affin kolloidot, különböző stabilitásu és szervaffinitásu komplexeket készitettünk /EDTA, DTPA, citrát, transferrin/.

A $^{115}In^{m}$-mel jelzett kolloidok a vérből 2-3 perces félidővel eliminálódnak, átlag szemcseméretük 100-300 mμ, a májban 85-90%-ban, a lépben 3-5%-ban halmozódnak.

A ^{115}Cd-$^{115}In^{m}$ generátornak az a hátránya, hogy a ^{115}Cd anyaelem fizikai felezési ideje relative rövid, az eluált $^{115}In^{m}$ radioaktiv koncentrációja kicsi.

$^{115}In^{m}$-es radioaktiv gyógyszerek

$^{115}In^{m}$-EDTA, $^{115}In^{m}$-DTPA

Az in vivo stabil $^{115}In^{m}$-EDTA és DPTA komplexek intravénás adás után az extracelluláris térben oszlanak el. A szervezet anyagcseréjében nem vesznek részt; változatlan kémiai formában a glomerulusokon keresztül filtrálódnak. Biológiai félidejük embernél 100-150 min. Az extracelluláris tér a radioaktiv indiumkomplexekkel meghatározva a testsuly 22-24 %-ával adódott. Agytumorok extracelluláris terében szelektive jól halmozódnak.

$^{115}In^{m}$ transzferrin komplex

Hordozómentes formában az In^{3+} transferrinhez kötődik. Ez esetben a vérből 13 órás biológiai félidővel eliminálódik. A hordozó indium mennyiségének növelésével a transzferrin telitődik, és a $^{115}In^{m}$ a csontban és a vesekéregben halmozódik.

A $^{115}In^{m}$-es radioaktiv gyógyszerek ellenőrzése

A radionuklid-tisztaságot γ-spektroszkópiával ellenőrzik. A ^{115}Cd és egyéb radionuklid szennyezők max. 0,001%-ban lehetnek.

A radiokémiai szennyezők ellenőrzése papirkromatográfiás és papirelektroforézises módszerekkel folyik. A $^{115}In^{m}$ kolloidokban ionos indium nem mutat-

ható ki. A $^{115}In^{m}$ EDTA-ban 2%-nál kevesebb ionos indium mutatható ki.

A kémiai szennyezők közt a többértékü nehézfémek (pl. Fe, Cr, Al, stb) a kolloidképzést zavarják; emissziós spektroszkópiás módszerekkel ellenőrzik őket.

A $^{113}In^{m}$-GENERÁTOR

A bomlási reakció:

$$^{113}Sn \xrightarrow[\sqrt{118\ d}]{EC} {}^{113}In^{m} \xrightarrow[1,7\ h]{\gamma^{-}} {}^{113}In$$

A százperces fizikai félidejü $^{113}In^{m}$-át a nukleárismedicinában 1966-ban kezdték használni. Dusitott ^{112}Sn célanyagból megfelelő fajlagos aktivitásu ^{113}Sn állitható elő, nagy neutronfluxusu atomreaktorban. A ^{113}Sn-t klorokomplex formában, $ZrO/OH/_2$-on vagy szilikagélen adszorbeálják, 0,05 n sósavval, 60-80%-os hatásfokkal eluálják. Az eluálási térfogat az oszlop méreteitől függ.

A generátor folyamatosan használható, nagy távolságra is szállitható. Forgalombahozatal előtt a generátor részletes farmakológiai vizsgálata a gyártó cégnél elvégezhető. Hátránya, hogy nehézkes a ^{113}Sn meghatározása a $^{113}In^{m}$-os radioaktiv gyógyszerekben.

A $^{113}In^{m}$ leányelem előnye a 100 perces fizikai felezési idő.

Kémiai tulajdonságai következtében stabil komplexek, kolloidok készithetők, mely nem halmozódik a pajzsmirigyben és a choroid plexusban. Plazma transzferrinhez kötődik. A savas eluálás a baktériumos fertőzés veszélyét csökkenti. Hátránya: a rövid felezési idő (bizonyos vizsgálatoknál); a 0,390 MeW gammakamerával gyengébb hatásfokkal detektálható, valamint a 0,05 n HCl eluátum savassága miatt közvetlenül parenterálisan nem adható.

$^{113}In^{m}$- es radioaktiv gyógyszerek

I./ Indiumkomplexek /EDTA,DTPA/ vese és agytumor szcintigráfiára;
II./ Makroaggregátumok tüdőszcintigráfiára;
III./ Kolloidok máj, lép, csontvelő vizsgálatára.

A $^{113}In^{m}$-es radioaktiv gyógyszerek ellenőrzése

$^{113}In^{m}Cl_3$

A hordozómentes In^{3+} 1,4-2,5 pH-értéknél a plazma transzferrinhez kötődik. Fontos, hogy plazmához adott eluátum pH-ja 2,5-nél nagyobb ne legyen, nehogy az In^{3+} hidrolizáljon; a pH-t tehát ellenőrizni kell, és citrátpuffert kell használni.

Kolloidok és mikroaggregátumok

A kolloidképződés hordozómentes oldatban 7-es pH-val teljes. A szemcseméret reprodukálhatósága problémát jelent, mivel más kationok kis mennyiségben is befolyásolják a szemcseméretet. A lugos irányu pH-változás szintén befolyásolja az átlag szemcseméretet.

Komplexek

Ezek stabil vegyületek; a komplexképzőt a savas eluátumhoz semlegesités előtt adjuk.

Makroaggregátumok és mikrogömbök

A $^{113}In^{m}$ a $Fe/OH/_{3}$ részecskékkel együtt leválik. Alkalmas pufferközegben az ionos indium a humán szérumalbumin mikrogömbökhöz jól kötődik.
A ^{113}Sn radionuklid szennyezőit az előállító cégnél mutatják ki. A kémiai szennyezőket (Sn, Zr, Si) mikrokémiai módszerekkel detektálják.

A sterilitási és pirogenitási vizsgálatokat generátornál havonta, radioaktiv gyógyszereknél kéthetente célszerü elvégezni.

A radionuklid generátorokat előállitó cégek a rövid felezési idejü nuklidokkal jelzett radioaktiv gyógyszerek előállitásának megkönnyitésére megfelelő minőségü steril reagenseket, eszközöket, edényzetet, analitikai reagenseket stb. hoznak forgalomba. Ezek a felhasználási egységek (kitek) megfelelően ellenőrzött módszerek alapján, adott minőségü radioaktiv gyógyszer előállitását biztositják.

A $^{99}Tc^{m}$-es radioaktiv gyógyszerek előállitásához kolloid, DTPA komplex makroaggregát, polifoszfát kitek, a $^{113}In^{m}$-es radioaktiv gyógyszerekhez kolloid, makroaggregátum EDTA-komplex transzferrin kitek kaphatók.

Az irodalmi hivatkozásokat a szerző készségesen bocsájtja rendelkezésre.

HIREK

IZOTÓPOK ÉS SUGÁRZÁSOK AZ ORVOSTUDOMÁNYBAN

Az indiai Bhabha Atomkutató Központ izotóposztálya több mint 50-féle radioaktiv gyógyszer előállitási módszerét dolgozta ki. 35-öt rendszeresen termelnek, 109 hazai orvosi intézmény számára.
Nuclear India augusztus.

Orvosi termékek sugárzásos sterilezésére szolgáló demonstrációs berendezés épül Trombayban /India/. A tervek szerint 1973 végére készül el.
Nucleár India augusztus

IZOTÓPOK AZ IPARBAN

A Kohó- és Gépipari Minisztérium korábban azzal a feladattal bizta meg a Lampart Zománcipari Müvek kecskeméti gyárát, hogy az MTA Izotóp Intézetével együttmüködve nedvességmérési eljárást dolgozzon ki. Az eredményekről Rózsa Sándor, az Izotóp Intézet osztályvezetője "Izotópos nedvességmérés öntödei alkalmazása", valamint "Izotópos müszerek mérési és szabályozási feladatok megoldásában" cimmel, Tóth Endre fizikus /Izotóp Intézet/ a neutronlassitásos nedvességmérés elvi alapjairól és gyakorlati alkalmazásáról, valamint Pázmándi László fizikus /Izotóp Intézet/ a neutronlassitásos nedvességmérőnek a kecskeméti gyár kádöntő üzemében való felhasználásáról tartott előadást, a VII. Bács-Kiskun megyei müszaki hetek keretében rendezett ankéton.
Petőfi Népe 1972. november 2.

A Dunaujvárosi Hirlap november 21-i számában fényképet közölt a folyamatos öntőmü I. sz. öntőgépe izotópos acélszint-szabályozó készülékének beméréséről.

NUKLEÁRIS ENERGETIKA

A kazahsztáni Sevcsenko városban megkezdték egy atomerőmü próbaüzemeltetését. Az erőmü legfontosabb sajátossága, hogy a nukleáris energetika történetében először készitettek gyors neutronokkal müködő ipari reaktort.
A Kaspi-tenger partján, a Mangislak-félszigeten, a Szovjetunió nagy kőolajkitermelő központjában létesitett 350 000 kilowatt kapacitásu atomerőmü a villamosenergián kivül naponta 120 000 köbméter édesvizet is szolgáltat majd.
Népszava 1972. december 13.

Harminc éve, 1942 december 2-án indult meg a világon először önfenntartó láncreakció. Az Enrico Fermi vezette kutatócsoport ekkor helyezte üzembe Chicagoban az első atomreaktort.
Magyar Hirlap 1972. december 3.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

IV.

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 2. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 2. SZÁM

BUDAPEST 1973. FEBRUÁR

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Hirling József, Szili Sándor, Fekete Zoltán
MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.77

F. Frevert
Studiengesellschaft für Atomenergie GmbH, Forschungszentrum Seibersdorf, Österreich

Kovács József, I.Ali Haroun
Központi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet, 1022 Budapest, Herman O.ut 15

Vincze István
Semmelweis Orvostudományi Egyetem Orvosi Vegytani Intézete,
1088 Budapest, Puskin u. 9

Kovács Mihály, Beleznay Ferencné, Andrási Andor, Erdélyvári István
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.49

Csongor Éva, a kémiai tudományok kandidátusa
MTA Atommagkutató Intézete, 4001 Debrecen 1, Pf.51

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült a MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v.:Gyenes Imre
Engedély sz.: III/400/s/215/72. Budapest. Index-szám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7579
1973. 2. szám.
Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlap-üzleteiben és a Posta Központi Hirlap Irodánál /KHI 1900 Budapest V. József nádor tér 1./ 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára.
Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

Modern irányzatok a szovjet ipari radiográfiában..... 51
Hirling J., Szili S., Fekete Z.

Современные направления развития радиографии в советской промышленности

Up-to-Date Trends in the Soviet Industrial Radiography

Az izotópok ipari alkalmazása Ausztriában /A Seibersdorfi Kutatóközpont tevékenysége/..... 64
F. Frevert

Применение радиоизотопов в промышленности Австрии /Деятельность Исследовательского центра в Зайберсдорфе

The Industrial Use of Isotopes in Austria /Results of Seibersdorf Research Centre/

Szén-14-gyel jelzett herbicidek hatásának és bomlásának vizsgálata szőlőlevélen és algán..... 79
Kovács J., Vincze I., I.Ali Haroun

Исследования по влиянию и распаду гербицидов, меченных ^{14}C в листьях винограда и альгах

Investigations on the Effect and Degradation of ^{14}C-Labelled Herbicids on Vine Foliage and Algas

Környezeti minták γ-spektrometriás mérése és a mérési eredmények számológépes analizise..... 84
Kovács M., Beleznay F.-né, Andrási A., Erdélyvári I.

Измерение γ-спектрометрией проб, взятых из биосферы, и обработка данных с помощью электронно-вычислительной машины

γ-Spectrometry of Environmental Samples and the Evaluation of Data with Computer

Mérések a légkör radiokripton tartalmának növekedésére vonatkozóan.. 96
Csongor É.

Измерение по повышению концентрации ^{85}Kr в атмосфере

Measurements on the Raising Level of Radiokrypton Concentration of Atmosphere

HIREK..... 105

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 2. szám.

MODERN IRÁNYZATOK A SZOVJET IPARI RADIOGRÁFIÁBAN

Hirling J., Szili S., Fekete Z.
MTA Izotóp Intézete, Budapest

A VNIIRT által kidolgozott legujabb γ-defektoszkópok és módszerek

Современные направления развития радиографии в советской промышленности
Хирлинг, И., Сили, Ш., Фекете, З.

Разработанные ВНИИРТ новые γ-дефектоскопы и методы

Up-to Date Trends in the Soviet Industrial Radiography
Hirling, J., Szili, S., Fekete, Z.

Novel γ-defectoscopes and methods developed at the All-Union Research Institute for Radiation Techniques, Moscow

Az ipari radiográfiai módszerek és berendezések fejlesztésével a Szovjetunióban az Összövetségi Sugártechnikai Tudományos Kutató Intézet /VNIIRT/ foglalkozik. A fejlesztési-kutatási eredményeket több szervezet közremüködésével érik el. A gyártó üzemekben előállitott termékeket, sugárforrással felszerelve, az Izotóp Egyesülés értékesiti, majd a"SZUMNRT" nevü szervezet végzi el, külön szerződés alapján, a készülékek felszerelését, sugárforráscseréjét, szervizelését, a személyzet kiképzését stb. Az Interatominsztrument KGST vállalat keretében nemzetközi fejlesztést és kereskedelmet is folytatnak. Egyes módszerek és készülékek fejlesztését /pl. a vizuális radiográfia, gyorsitók, xeroradiográfia/ más intézetek végzik.

A fejlesztés két nagy csoportra: a berendezésekre és az eljárásokra terjed ki.

UJTIPUSÚ SZOVJET γ-DEFEKTOSZKÓPOK

A korábbi években számos távvezérelhető szovjet γ-defektoszkóp tipus vált ismertté, részben a magyar laboratóriumokban való alkalmazásuk révén is. Egyrészük azonban ma már elavult, ezért gyártásukat beszüntették. Ezek közé tartozik az ismert GUP család és a RID-22 laboratóriumi készülék. A RID család többi tagját lényegesen módositják, és ujabb tipusokat is fejlesztenek. A modernizált defektoszkópok tipusjelzései előtt megkülönböztetésül a "gamma" szót fogják alkalmazni: pl: Gamma-RID-21. A modernizálás célja: a sulycsökkentés és/vagy azonos suly mellett, nagyobb aktivitás beépitése, továbbá az urán védőanyag általánosabb alkalmazása; az acél helyett titánötvözetü szerkezeti anyagok felhasználása, illetve egyéb konstrukciós változtatások /pl. menetes helyett bajonettzáras csatlakozás stb./. Valamennyi szovjet γ-defektoszkóp vezérlése mechanikus vagy elektromechanikus.

1973-tól az alábbi γ-defektoszkóptipusokat forgalmazzák.

1. *RID-11 tipusú γ-defektoszkóp* /1. ábra/.

Uránvédelmü, könnyü, távvezérelhető sorozatkészülék. Maximálisan 12 Ci-s ^{192}Ir sugárforrás befogadására alkalmas. Kezelőpultja, mely villamos helyzetjelzést is ad, 5 m-re van a munkatartótól, és a sugárforrás onnan további 5 m távolságra, vizsszintesen vagy függőlegesen, mechanikusan vezérelhető ki.

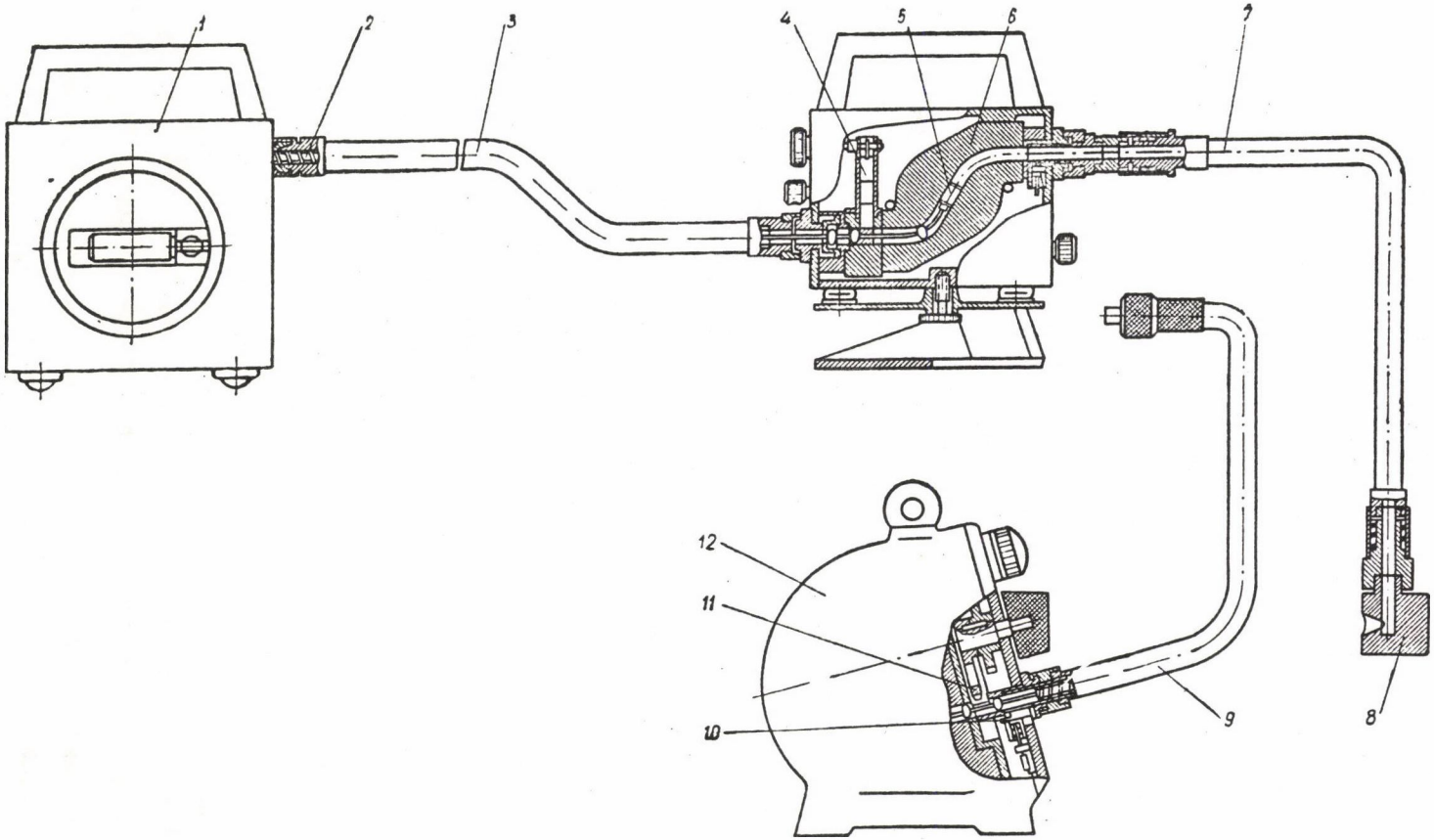
A komplett készüléket terepen is könnyen lehet mozgatni, saját molnárkocsiszerü szállitó szerkezetre rögzitve /2. ábra/.

Maximálisan 30 mm acél vizsgálatához ajánlják, 50 cm-nél kisebb sugárforrás-film távolság esetén 0,5x0,5, 1x1 és 1,5x1,5 mm-es sugárforrásokkal.
Ára elég tetemes: 6700 rubel /268 eFt/
Tömege:
- a munkatartó 13 kg
- kezelőpult 9 kg
- tárolótartó 87 kg
- kocsi 15 kg

2. *RID 21M tipusu γ-defektoszkóp*

Volfrám védelmü, ipari igénybevételre méretezett, távvezérelhető sorozatkészülék. Ezekből több példány Magyarországon is eredményesen müködik. Maximálisan 5,3 Ci ^{137}Cs vagy 9,5 Ci ^{192}Ir befogadására alkalmas. A jövő évi fejlesztés keretében a munkatartót uránból fogják készitени. Igy a fej 27 kg-os tömegét 15 kg-ra csökkentik, amellett, hogy a tárolható aktivitást 100 Ci-re növelik.

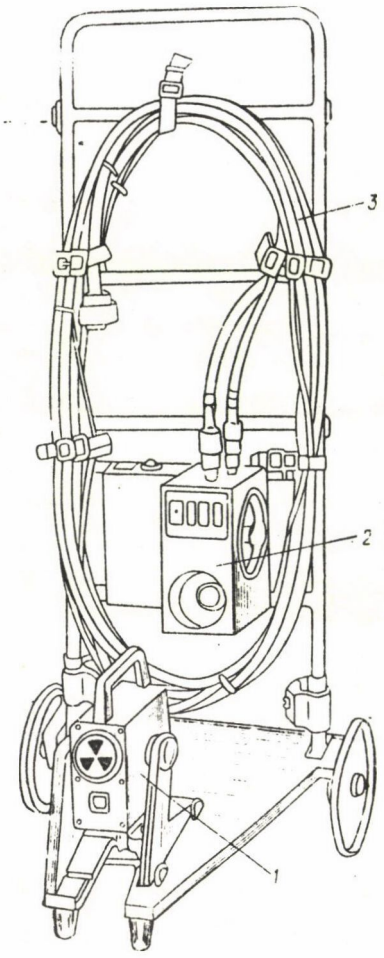
A sugárforrást 8 m távolságból mechanikusan lehet a fejből kivezérelni vizszintesen 12-m-re, függőlegesen 6 m-re. A teljes készülék nehezebb



1. ábra

A RID-11 tipusu γ-defektoszkóp

1 - vezérlõegység, 2 - kinyomó huzal, 3 - gégecsõ, 4 - retesz, 5 - sugárforrás, 6 - munkatartó, 7 - sugárforráskivezetõ cső, 8 - kollimátorfej, 9 - betöltõcső, 10 - támasz, 11 - rögzitõ, 12 - tárolótartó



2. ábra

RID-11 γ-defektoszkóp

1 - munkatartó, 2 - vezérlőegység
3 - kábelek

kivitelü, kétkerekü kocsival terepen is jól szállitható.

Maximálisan 60 mm acél vizsgálatához ajánlják.

A készülék uj ára: 5000 rubel /200 eFt/./A régi ára 3900 Rbl volt/.

Tömege: munkatartó 27 kg
vezérlőpult 8,5 kg
vezetékek 8 kg
tárolótartó 110 kg
szállitókocsi 56 kg

3. *RID-22 tipusú laboratóriumi γ-defektoszkóp* /3. ábra/

Laboratóriumi célu készülék. Mechanikus óraszerkezettel és elektromos helyzetjelzővel felszerelt besugárzó fejét hidraulikus vezérléssel lehet a kivánt helyzetbe beállitani. A gyártott 25 db-ot még értékesitik, de további példányokat már nem gyártanak. Maximálisan 52 Ci ^{137}Cs sugárforrás befogadására alkalmas. 80 mm vastagságig ajánlják acélalkatrészek laboratóriumon belüli vizsgálatára.

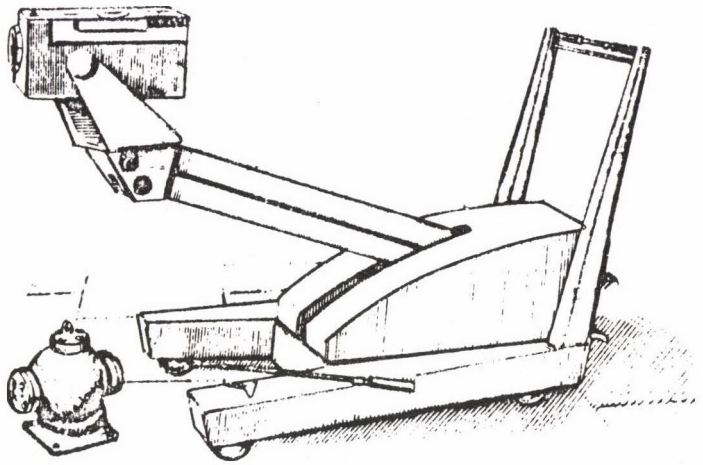
Ára magas: 11 532 rubel /461 280 Ft/

Tömege: munkatartó 50 kg
állványos kocsi 190 kg
tárolótartó 60 kg

4. *RID-32 tipusú laboratóriumi γ-defektoszkóp*

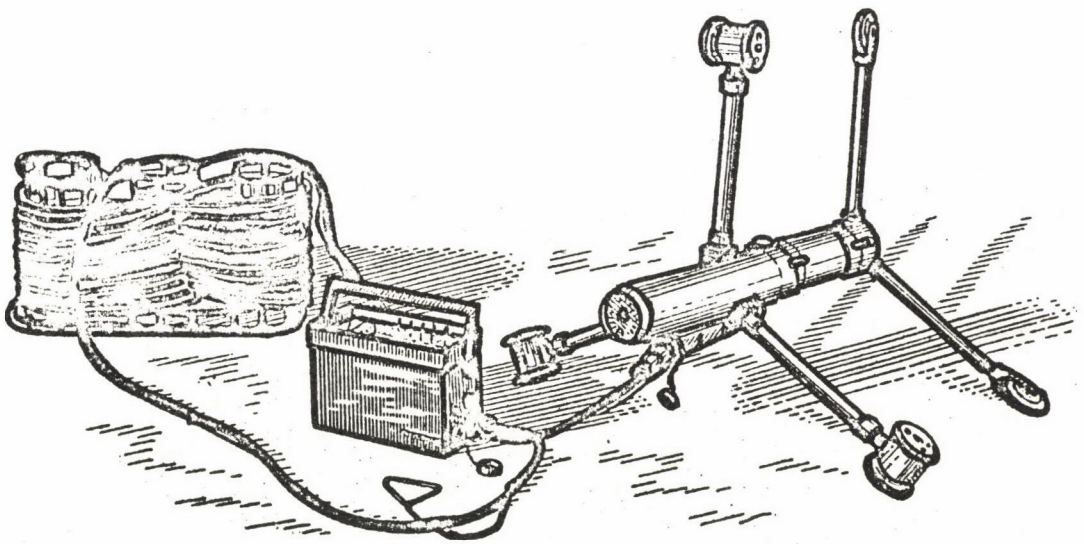
Az előző laboratóriumi defektoszkóp nagyméretü, tökéletesitett változata. Uránvédelmü, ezért 100 Ci ^{60}Co sugárforrás befogadására is alkalmas. 50-200 mm vastag acéltárgyak vizsgálatára ajánlják. Gulaalaku kollimált sugármezejének maximális mérete, 1 m távolságban, 600 x 600 mm.

Félautomatikus müködtetését 30 m-es kábellel végzik. A besugárzó fejet lefelé 90°-os, felfelé 45°-os, vizszintesen pedig 360°-os szögben lehet elforditani, és 2,5 m-es magasságig alkalmazható. A sugárforrás helyzetjelzése radiometrikus. Elektromos hálózatról müködik. Ára a RID-22-höz képest olcsó, mindössze 8000 rubel /320 eFt/.



3. ábra

RID-22 tipusu laboratóriumi γ-defektoszkóp



4. ábra

Trassza tipusu, önjáró, csővizsgáló γ-defektoszkóp

Tömege: munkatartó 300 kg
vezérlőpult 35 kg
tárolótartó 800 kg
kocsi 400 kg

Több más nehéz kivitelü berendezés is készül. A RID-3l-es és RID-4l-es defektoszkóp például 75, illetve 750 Ci ^{60}Co sugárforrás befogadására lesz alkalmas.

5. *Trassza tipusú, csőben járó γ-defektoszkóp* /4. ábra/

Csővezetékek üzemi előgyártásánál a hegesztési körvarratok vizsgálatára készült. A berendezés cserélhető száru kerekekkel 32 m mélységig képes behatolni 690-1180 mm-es átmérőjü csövekbe. Amikor a mozgó sugárforrás a hegesztés sikjába érkezik, akkor a cső palástján kivül elhelyezett érzékelő fej a készüléket megállitja. Igy a cső középpontjából a teljes körvarrat egyidejüleg vizsgálható. A készülék hálózatról müködik. A törzsében lévő, bajonettzárral rögzitett defektoszkópegység kioldható, és külön is felhasználható pl. két falon keresztüli felvétel készitéséhez.

A defektoszkóp 5,3 Ci ^{137}Cs sugárforrással müködik. Maximálisan 60 mm acélvastagság vizsgálatához ajánlják.

Ára: 9900 rubel /396 eFt/ Régi ára 3969 rubel volt.

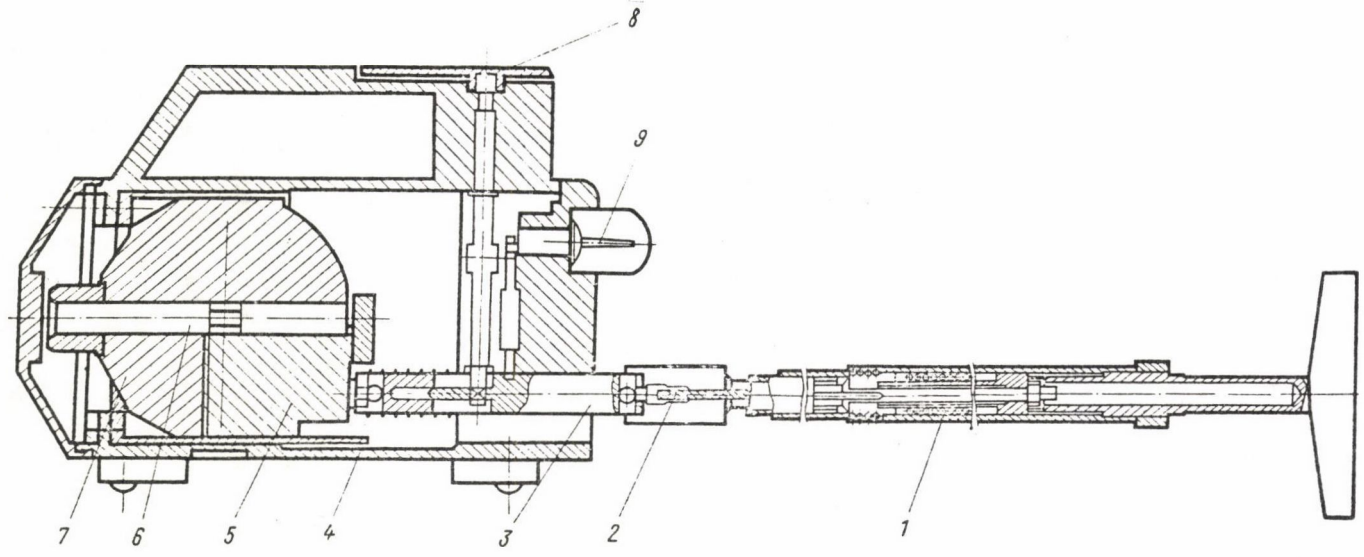
Tömege: munkatartó 21 kg
vezérlőpult 10 kg
kocsi 36 kg
tárolótartó 60 kg

Az önjáró csővizsgáló γ-defektoszkóp továbbfejlesztéseként még 1972-ben befejezik a Magisztrál tipusu, vezetéknélküli kisérleti készülék előállitását, amely a Trasszához hasonlóan két-háromszoros kerékmegtámasztással fog a nagy átmérőjü /1600-2500 mm-es/ csövekben mozogni. A készülék stabilizálását az akkumulátorház bolygós felfüggesztésével kivánják megoldani. Hatótávolsága 1,5 km lesz /oda-vissza 3 km/. A készülék $\pm$0,02 D pontosságon belüli megállitását 500 mCi aktivitásu külső ^{137}Cs sugárforrás és változó impulzusokkal vezérelt szcintillációs detektor biztositja. A defektoszkópegységet 200 Ci ^{192}Ir sugárforrással tervezik feltölteni. A készülék érdekessége, hogy tervezésénél szélsőséges hőmérsékleti tartományokat /-40°C-tól +50°C-ig/ vesznek figyelembe. Emiatt természetesen az akkumulátorok energiájának egy részét a készülék temperálására kell forditaniuk.

A készülék várható sulya: 250 kp.

6. *Gazprom tipusú γ-defektoszkóp* /5. ábra/

Csővezetékek két falon keresztül történő vizsgálatához készült. A



5. ábra

Gazprom tipusu, csővizsgáló γ-defektoszkóp

1 - rugó, 2 - huzal, 3 - kar, 4 - ház, 5 - mozgó védőbetét, 6 - tubus, 7 - álló védőbetét, 8 - fogantyu, 9 - retesz

berendezés 273-1220 mm átmérőjü cső falára tetszőleges helyzetben, hevederrel rögzithető. A kollimált sugármező mérete 550 mm távolságnál 120x 1200 mm, amely a fej szegmensének mechanikus, távvezérelt hátrahuzásával tehető szabaddá. A vezérlő bowden hossza 5 m. A készülék 5,3 Ci ^{137}Cs befogadására alkalmas, és 20 mm-nél nem nagyobb falvastagságu acélcsövek vizsgálatára ajánlják.

Ára: 4000 rubel /160 eFt/ Régi ára 2140 rubel volt.

Tömege:		
	munkatartó	20 kg
	vezérlőkábel	5 kg
	tárolótartó	50 kg
	állvány és heveder	5,5 kg

7. *Sztapel-5 tipusú γ-defektoszkóp*

A készülék a hajóépités radiográfiai igényeinek kielégitésére készült. Ezt fejezi ki a neve is /magyarul: Sólya-5/. A négyzetes keresztmetszetü, $53^{o}x53^{o}$ nyilásszögü sugárnyaláb az uránvédelem szájszerü, mechanikus nyitásával tehető szabaddá. Maximálisan 10 Ci ^{192}Ir sugárforrás betöltésére alkalmas. 50 mm-nél nem vastagabb acélok vizsgálatára ajánlják. Müködtetése 3,5 m hosszu bowdennal történik. A módositás után a vázszerkezetet acél helyett titánötvözetből készitik, amelynél a munkatartó tömege 10 kg-ról 7 kg-ra csökken.

Ára: 3083 rubel /122,500 Ft/

Tömege:		
	munkatartó	10 kg
	vezérlőszerkezet	3,7 kg
	tárolótartó	56 kg
	állvány	1 kg

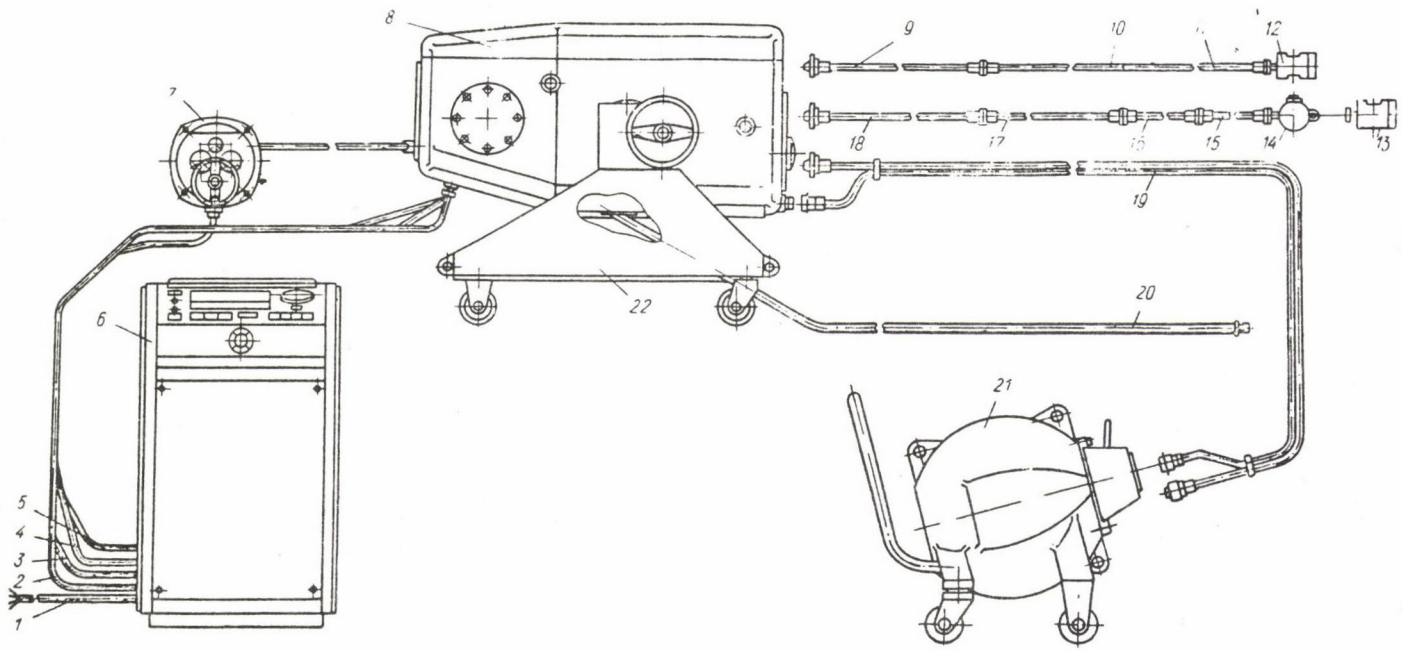
8. *Sztapel-20 tipusú γ-defektoszkóp*

Szintén a hajóépités céljait szolgáló, de nagyobb teljesitményü és elektromechanikusan müködő készülék, amely 10 m távolságból akkumulátorral, hálózatról vagy kézi vezérléssel egyaránt müködtethető.

A kollimált sugárnyaláb 600 mm-es távolságnál 500x500 vagy 500x250 mm-es mezőt "viágit meg". A készüléket, maximálisan 40 Ci ^{192}Ir sugárforrással betöltve, 10-80 mm-es acél vizsgálatához ajánlják.

Ára: 4000 rubel /160 eFt/

Tömege:		
	munkatartó	18 kg
	vezérlőpult	11 kg
	tárolótartó	56 kg
	állvány	3 kg



6. ábra

Kama tipusu nagy defektoszkóp

1-5 - kábelek, 6 - vezérlőpult, 7 - csatlakozó, 8 - munkatartó, 9-18 - sugárforrásvezető cső részei, 19 - átszerelő cső, 20 - kocsirud, 21 - tárolótartó, 22 - kocsi

9. *Neva típusú γ-defektoszkóp*

Kizárólag panorámikus elrendezésü alkatrészek laboratóriumon belüli vizsgálatára készült. A munkatartó 50 m távolságra elhelyezett vezérlőpultról müködtethető. A kuposgyürü alaku sugármező szélessége 5 m távolságnál 300-1800 mm-ig le- és felfelé 45°-os szöghatárok között változtatható.

Az uránvédelmü munkatartó pneumatikusan nyilik, és rugóerő hatására záródik. A munkatartó nyitott vagy zárt állapotát radiometrikus rendszer ellenőrzi, és lámpával, illetve csengővel jelzi. A készülék maximálisan 263 Ci ^{137}Cs sugárforrással müködhet. 5 m-es sugárforrás-film távolságig és 80 mm-es acélvastagságig ajánlják panorámikus felvétel készitésére.

A készülék ára: 15 490 rubel /619.600 Ft/

Tömege:

munkatartó	130 kg
vezérlőpult	80 kg
tárolótartó	250 kg

10. *Kama típusú γ-defektoszkóp* /6. ábra/

Nagy falvastagságu acéltárgyak laboratóriumon belüli vizsgálatára fejlesztették ki, azon esetekre, amikor a betatronhoz képest kisebbek a képminőséggel szembeni követelmények. A készülék elvi felépitése a RID-21-hez hasonló, mivel itt is ki lehet vezérelni a sugárforrást a munkatartóból.

Az 1280 Ci maximális aktivitásu ^{60}Co sugárforrás elektromechanikus kivezérlése a munkatartóból az 50 m távolságban lévő vezérlőpultról történik. A sugárforrás-tömlő hossza 12 m, amelynek a végére különféle kollimáló feltétek helyezhetők. A munkatartó és a tárolótartó kocsira van szerelve. A készüléket 60-250 mm vastag acéltárgyak vizsgálatára ajánlják.

Ára még nem ismeretes.

Tömege:

munkatartó	1400 kg
vezérlőpult	40 kg
tárolótartó	1300 kg

MODERN RADIOGRÁFIAI MÓDSZEREK

A távvezérelhető γ-defektoszkópok intenziv fejlesztése mellett a radiográfiai módszerek korszerüsitését tartják a Szovjetunióban fontosnak. A legfontosabb fejlesztési irányok és eredmények a következők.

1. *Energiafüggetlen exponométer*

Az expoziciós idő meghatározása közismerten sok bizonytalanságot rejt

magában. A film megfelelő feketedése, amely a gépi előhivás és automatikus kiértékelés előfeltétele, nagymértékben függ a sugárforrás effektiv aktivitásától /önabszorpció/ és energieloszlásától, amely a különböző alaku, sürüségü és vastagságu vizsgálandó darabokkal való kölcsönhatás következtében számitásokkal nehezen követhető. A probléma megoldására 60-80 keV-től 1,3 MeV-ig /^{170}Tm-tól ^{60}Co-ig/ energiafüggetlen exponométert fejlesztenek az effektiv γ-dózis mérésére és a defektoszkópok vezérlésére, a jelenlegi időkapcsolóórák /timerek/ helyett. A GM-csöves müszer az energiaszelekciót előtétszürőkkel végzi el.

2. *Automatikus filmelőhivó készülék*

Az exponált filmek előhivására már számos berendezés ismert, azonban szükségessé vált olyan készüléktipus kifejlesztése, amely a szovjet és az import filmeket egyaránt automatikusan előhivja, illetve szárazról szárazra kezeli. A Szovjetunióban nem ritkák az 1 millió felvétel/év kapacitásu munkahelyek, amelyek sok import filmet is használnak, és termelékeny előhivó automatát igényelnek. A jövő évben elkészülő automata 10-40 cm-es filmszélesség mellett 1-9 min között változtatható hivási idővel fog dolgozni. 1974-ben terepi munkákhoz alkalmas szállitható automata előhivó fejlesztését is megkezdik.

3. *Automatikus filmkiértékelés*

A nagy termelékenységü és azonos alkatrészeket vizsgáló laboratóriumoknál, ahol a filmek fototechnikai kezelése garantáltan azonos, megvan az elvi lehetőség a radiogramok kvantitativ, automatikus kiértékelésére.

Az automatikus kiértékelésre háromféle módszeren is dolgoznak, amelyek azonban még csak korai kisérleti stádiumban vannak.

Az egyik módszer szerint a filmet átlátszó hengerre rögzitik, amelynek a belsejében stabil fényforrás van. A fényforrás és a vele merev kapcsolatban lévő fotoelektromos érzékelő csigaalakban letapogatja a filmet. A kapott feketedésértékeket digitál-analóg jelátalakitón keresztül számitógépre viszik, amely pontról-pontra összehasonlitja a hibamentes felvétel információival. Az eltérések a hibák jelenlétére vezethetők vissza, amelyek mennyiségi határai ilymódon kijelölhetők. Jelenleg a filmzaj kiszürése a legnagyobb probléma. A készülék termelékenysége és érzékenysége egymással forditott arányban áll.

A másik módszer szerint az információkat lyukszalagra rögzitik, és szintén számitógépre viszik.

A harmadik eljárás a felvételeket TV rendszerrel nagymértékben fel-

nagyitva teszi szemlélhetővé, illetve egy scanner-rendszerrel letapogatva teszi automatizálhatóvá.

4. *Uj sugárforrások fejlesztése*

A közepes γ-energiák tartományában a ^{137}Cs izotóp, viszonylag nagy térfogata miatt, közismerten nem tul előnyös radiográfiai célokra. Felváltására a ciklotronnal jó hatásfokkal előállitható, monoenergetikus ^{54}Mn izotóp jöhet szóba. γ-energiája 840 keV, felezési ideje 310 nap. Fajlagos aktivitása elérheti a 2000 Ci/g értéket. Jelenleg 200 Ci/g értéket értek el, amely már megközeliti a ^{60}Co 500 Ci/g-os értékét.

Előrehaladott állapotban vannak a ^{241}Am sugárforrás előállitásának kisérletei is.

5. *Neutronradiográfia*

A γ-radiográfiával szemben, mint ismeretes, a neutronradiográfia főleg kis rendszámu elemek vizsgálatára alkalmas, mivel a neutronok a számos nagy sürüségü anyagon /pl. W,U,Pb/ viszonylag kis gyengüléssel haladnak át. A neutronokat a röntgenfilmek közvetlenül nem érzékelik, ezért különféle átalakitási módszereket kell alkalmazni. Háromféle módszer ismeretes: elektronokká, látható fénnyé vagy lágy γ-sugárzássá alakitják át a neutronokat.

a/ Képalkotás elektronkonverzióval.
A film mögé helyezett alkalmas fémfóliákból /Ga, Ca, In, Dy, Rh, Ag, Au stb./ a neutronok konverziós elektronokat váltanak ki, amelyek visszaszóródva a neutron sugárintenzitásával arányosan feketitik a filmet. Legjobb a gadolinium fólia, amelynek optimális vastagsága 10 µm, azonban a gyakorlatban csak 50 µm vastag fóliát tudnak előállitani. A röntgenfilm 1,5 - 2-es feketedéséhez $1\text{-}5.10^8$ $n/cm^2.s$ neutronfluxus szükséges. Indiumból 0,3-0,5 mm, diszpróziumból 0,3 mm a hátsó fólia optimális vastagsága. Az elülső fóliák néhány mikronig erősitenek, de felette már, a neutronelnyelés miatt, gyengitenek. Mivel a gyakorlatban ilyen vékony fóliák gyártása kivihetetlen, ezért elülső fóliát általában nem használnak. A Ca, Rh fóliák, nagy energiáju részecskék és fotonok kibocsátása miatt, elmosódott képet eredményeznek, ezért nem alkalmazzák őket. Az arany fóliák jók, de drágák, és vagyonjogi őrzésük problematikussá teszi alkalmazásukat. A fóliákat aluminiumra kasirozzák. Leginkább egyoldalu emulzióval rendelkező, fototechnikai vagy autoradiográfiai filmeket alkalmaznak.

b/ Lumineszcens ernyők alkalmazása
A film elé ezüsttel aktivált cinkszulfid és litiumfluorid tartalmu er-

nyőt helyeznek. A neutronok az ernyő bórtartalmával /n, α/ kölcsönhatásba lépve fényt gerjesztenek, amely a filmet megfeketiti. 1,5-2 feketedéshez itt 10^5 - 10^6 $n/cm^2.s$ fluxus is elegendő, az ernyő szemcsés szerkezete miatt azonban a kép minősége rosszabb, mint a fémfóliákkal. A módszer alkalmas TV-s képátvitelre is.

c/ Autoradiográfiás módszer
A vizsgálandó anyag szerkezetének megfelelően különböző mértékben gyengül a neutronfluxus. A fluxuseloszlás helyi változásai a nagy aktivációs hatáskeresztmetszetü fémfóliát különböző mértékben aktiválják. Az aktiv fémlemezről a szokásos autoradiográfiai eljárással lehet filmfelvételt készitени. Erre a célra az In és Dy fóliák a legalkalmasabbak.

Neutronradiográfia céljára atomreaktort, Pu-Be forrást vagy neutrongenerátort alkalmaznak. A leképzés kupszögére párhuzamos /2°-nál kisebb/ neutronnyalábot javasolnak. Jó eredményeket értek el ólom-polietiléncső kombinációk, poralaku volfrámtermékek és aluminiumkombinációk, ólomcső-szervesüveg párositás, turbinalapátok kerámiazárványai stb. vizsgálatánál. Olajvezetékek paraffindugóit más módszerrel nem is lehet kimutatni.

A neutronradiográfia érdekes és hasznos kisegitő radiográfiai eljárás, amely technikai nehézkessége ellenére figyelmet érdemel.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 2. szám.

AZ IZOTÓPOK IPARI ALKALMAZÁSA AUSZTRIÁBAN (A SEIBERSDORFI KUTATÓKÖZPONT TEVÉKENYSÉGE)

F. Frevert
Österreichische Studiengesellschaft für Atomenergie G.m.b.H., Forschungszentrum Seibersdorf

Félvezető detektorok előállitása. Prompt neutronaktiválásos analizis, anyagösszetétel elemzése. Vastagságmérés és -szabályozás. A CAMAC-rendszer fejlesztése. Nedvesség- és teltségmérés. Röntgenfluoreszcencia-analizis. Felületi tömeg meghatározása. Nyomjelzéses vizsgálatok.

Применение радиоизотопов в промышленности Австрии /Деятелность Исследовательского центра в Зайберсдорфе/
Ф. Фреверт

Изготовление полупроводниковых детекторов Ge/Li/. Промпт нейтронноактивационный анализ. Определение материального состава веществ. Измерение и контроль толщины. Развитие в области системы CAMAC. Влагомеры, уровнемеры. Рентгенофлюоресцентный анализ. Определение веса единицы поверхности. Исследования мечеными атомами.

The Industrial Use of Isotopes in Austria /Results of Seibersdorf Research Centre/
F. Frevert

Production of Ge/Li/ semiconductor detectors. Prompt neutron activation analysis, components identification. Thickness gauging and control. Development in the field of the CAMAC system. Moisture and level measurements. X-ray fluorescence analysis. Determination of surface weight. Tracer investigations.

A következőkben röviden ismertetjük az izotópok ipari felhasználásának helyzetét Ausztriában, a Seibersdorfi Kutatóközpont egyes intézeteinek munkáján keresztül. Csak a fizikai alkalmazásokkal foglalkozunk, a sugárhatáskémiai és sugárbiológiai eredményekkel nem.

A FIZIKAI INTÉZET

Elsőként a spektroszkópiai minőségü *félvezető γ-detektorok előállitását* kell megemlitenem s alkalmazásukra példát felhoznom. Amikor néhány évvel ezelőtt e kérdéssel foglalkozni kezdtünk, a kereskedelemben kapható detektorok tul drágák voltak. Emiatt elhatároztuk, hogy megkisérelj̈ük e detektorokat magunk előállitani. Döntésünk olyan sikerre vezetett, hogy nemcsak saját szükségletünket tudtuk fedezni, hanem eladásra is gondolhattunk.

Igen tiszta germániumrudból indultunk ki. Bonyolult elválasztási folya-

mat után a litium bevitele következett a kristályrácsba. Először nagy vákuummal és kb. 410 °C-kal elértük, hogy a litiumionok egy-egy diffuziós idő /5-10 perc/ alatt 0,2-0,5 mm mélyen behatoljanak a kristályba. Megfelelő tisztitás és maratás után a rudat szobahőmérsékleten két nikkellap közé fogattuk, és "drifteltük". E célból hüthető üvegtokban felfüggesztettük, hogy a driftelés során felszabaduló hőt elvezessük. Az elektródként szereplő nikkellemezeket egyenfeszültségforráshoz kapcsoltuk, amelynek feszültsége 300 és 750 V között változtatható. Az elektromos erőtér hatására a litiumionok az egyik elektródtól a másik felé vándorolnak, s igy hozzák létre a kompenzált zónát. A drifsebesség igen lassu. 10 mm driftmélységhez 1,5-3 hónapra, sokszor még több időre van szükség.

A driftelés eredményeként olyan kristályképződményt kapunk, amely három zónából áll: a gallium adalékanyagot tartalmazó kiinduló anyag vastag rétegéből /galliumszennyeződés az igen tiszta germániumban is található/, a kompenzált zónából és végül abból a rétegből, amely a még érintetlen litiumból áll. Az ilyen félvezető detektor azonban még nem felel meg a követelményeknek. A kompenzált zóna még nem teljesen kompenzált, a detektort még egy driftelésnek kell alávetni, most már 0° körüli hőfokon. 1-2 nap mulva már elérjük a teljes kompenzálást. Ujabb alapos maratás, nagyon tiszta vizzel való leöblités és 1 perces száradás után a kész detektort a lehető leggyorsabban kriosztátba kell helyeznünk, és -190°C-ra /a folyékony nitrogén hőmérsékletére/ kell hütenünk, mivel máskép a kristály elveszti értékes tulajdonságát: a monoenergetikus γ-sugarakkal szembeni, a NaI/Tl/ kristályhoz vagy a proporcionális számlálóhoz viszonyitott rendkivüli felbontóképességét.

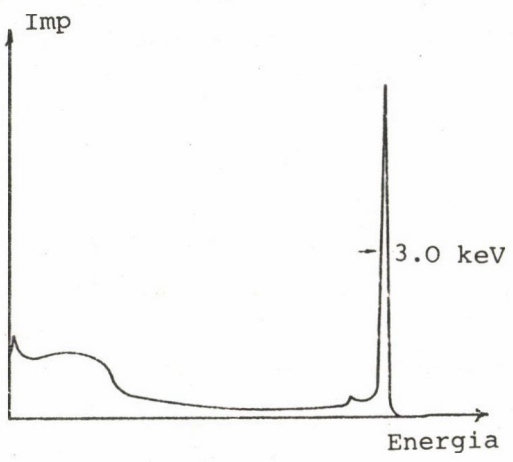
Az 1. ábra félvezető detektorral felvett jellegzetes γ-spektrumot mutat, mig a 2. ábra ugyanennek a radioaktiv izotópnak NaI/Tl/-szcintillációs detektorral mért spektrumát mutatja. Világosan felismerhető a fotovonalak feloldásában mutatkozó nagy különbség. A Ge-Li félvezető detektorok emiatt sem a fizikai alapkutatásban, sem a biológiai és ipari alkalmazásban nem hanyagolhatók el, a jelentősen kisebb detektálási hatásfok ellenére sem. Ez utóbbi abból adódik, hogy a szcintillációs kristály térfogata néhány nagyságrenddel meghaladja a félvezető detektorokét. Például egy 4x4 "-os szcintillációs detektor térfogata kb. 800 cm^3, felbontóképessége a legjobb esetben is 7,5% vagy 50 keV, 661 keV-es γ-sugárzásnál /^{137}Cs/, mig a Fizikai Intézet által az Izotópalkalmazási Intézet részére előállitott félvezető detektor térfogata 8 cm^3, felbontóképessége 0,4% vagy 2,7 keV ugyanezen γ-energiánál.

A következőkben példaként röviden ismertetem a félvezető detektorral végzett aktiválásos analitikai vizsgálatot, amely jelentősen különbözik az aktiválásos analizisről alkotott szokásos elképzelésünktől. Ez az un. *prompt neutronaktiválásos analizis*. A klasszikus esetben a vizsgálandó anyagban neutronokkal, protonokkal, más töltött részekkel vagy γ-sugárzással radioaktiv

izotópot állitanak elő. Ezeket az izotópokat felezési idejük, sugárzástipusuk és -energiájuk alapján egyértelmüen azonositani lehet, és kvantitative meg lehet határozni, majd az eredményekből lehet visszakövetkeztetni a kiindulási anyagban található elemekre. Az iparban azonban e módszer csak szakaszos vizsgálatra alkalmazható, mivel a besugárzás és a mérés között időbeli és térbeli távolság van. A prompt neutronaktiválásos analizisnél viszont azonnal mérik a besugárzás alatt emittált γ-sugárzást, s energiáját és intenzitását a minta összetevő elemeinek meghatározására használják. Folyamatos mérést is végezhetünk, s igy az ipari termelési folyamat szabályozásában jól használható, fontos kiegészitő adatokhoz juthatunk.

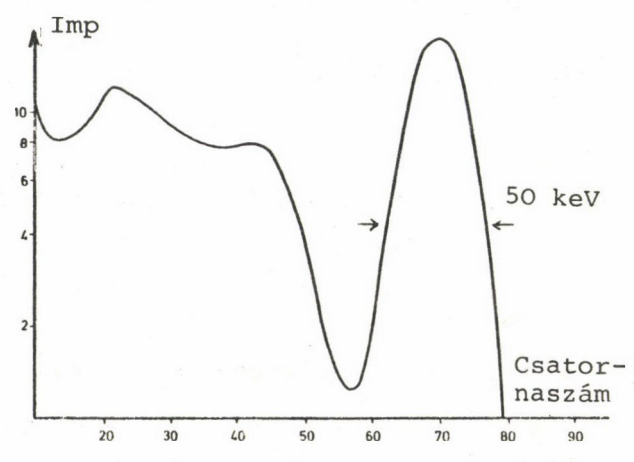
A viszonylag könnyen kezelhető, nagy hozamu neutrongenerátorok területén az utóbbi években tapasztalható fejlődés eredményeként a prompt neutronaktiválásos analizis az ipari folyamatok szabályozásánál már számításba jöhet. Rövid besugárzási és mérési ciklusnál, pl. egy ciklus elején, mindenekelőtt a $^{14}C/n,p/^{12}B$ reakció lép fel, 4,43 MeV prompt γ-vonallal. Igy az acélgyártás egyik legfontosabb paraméterét, a széntartalmat igen rövid idő alatt meg lehet határozni.

A Fizikai Intézet sikeres kisérleteket folytatott ezzel kapcsolatban, atomreaktorral. Jelenleg neutrongenerátoros mérőberendezést épitünk acélminták széntartalmának gyors, roncsolás nélküli meghatározására. Az eljárásnak az az előnye, hogy a minták sokkal gyengébben aktiválódnak, s különösen kevés hosszu felezési idejü aktivitás halmozódik fel a prompt γ-intenzitáshoz viszonyitva. Ez sugárvédelmi szempontból olyan nagy mintáknál fontos, amelyeket az aktiválás után is használnak.



1. ábra

^{137}Cs Ge-/Li/ félvezető detektorral felvett γ-spektruma



2. ábra

^{137}Cs NaI/Tl/ szcintillációs detektorral felvett γ-spektruma

A Fizikai Intézet az osztrák ipar számára *urántartalom-meghatározást* is végzett kőzetekben. Itt a vizsgálandó mintát neutronokkal besugározták, s ha a kőzetben urán volt, magjai hasadtak, s a hasadványtermékek időben késleltetett neutronokat bocsátottak ki. Ha a besugárzást megszakitjuk, a minta bizonyos ideig még kibocsájtja ezeket a neutronokat. Számuk jellemző az urántartalomra. Abszolut értéket ugy kaphatunk, ha a mérési eredményt standard mintáknál kapott urántartalomhoz hasonlitjuk. A Seibersdorfi Kutatóközpont ASTRA reaktorában a mintákat 3.10^{13} $n.cm^{-2}s^{-1}$ neutronfluxussal 40 s-ig besugározták, majd pneumatikus csőpostával árnyékolt neutronszámlálóhoz szállitották. Közvetlen a minta megérkezése után a késő neutronokat ugyancsak 40 s-ig mérték. 5 g-os mintanagyságnál a kimutathatóság határa 10^{-7} sulyrész urán.

Egy másik analitikai eljárás, amely a Fizikai Intézet révén az osztrák ipar rendelkezésére áll, az *anyagi összetétel analizise ionbombázásos tömegspektrometriával*. /A szilárdtestek összetételének és tisztaságának vizsgálata szabvány módszere a szikraion-tömegspektrometria./ Néhány éve olyan eljárást dolgoztak ki, amelynél a vizsgáló ionokat ionbombázással állitják elő. A beeső primer ionok energiájukat a minta atomjaival való szekunder ütközések sorozata révén vesztik el. A felületi atomok, mivel a kötési energián felüli energiát kapnak, a felületet semleges vagy ionizált állapotban hagyják el, s igy tömegspektrometriai alapon analizálhatók. Ez az eljárás különösen akkor mulja felül a szikraionforrás-tömegspektrometriát, ha a szennyezés vagy a keverékanyag koncentrációja mellett a felületen belüli vagy keresztüli gradiensére is szükség van. Megfelelően finom fókuszálásu /néhány mikron átmérőjü/ ionsugárral a mintát rácsszerüen letapogathatják. Mélységi profil mérésére célszerüen viszonylag nagy sugárátmérőt használhatunk, s igy a bombázási folyamat révén, az analizissel egyidőben, a minta rétegről rétegre végigmérhető.

A módszer kimutatási határa a ppm-tartomány körül van, optimális körülmények között azonban a ppb-tartományra is kiterjeszthető. Akárcsak a szikraionforrásoknál, az analizis itt is félkvantitativ. Abszolut mérésekhez tehát etalonokat kell használnunk. Relativ mérések viszont pontosan végezhetők, mivel az eredmény széles határok közt független a koncentrációtól.

AZ ELEKTRONIKAI INTÉZET

Az Elektronikai Intézet és az Izotópalkalmazási Intézet a Ludwig Hatschek Eternitwerke részére *digitális vastagságmérőt dolgozott ki, azbesztcementlapokhoz*. Ezt a berendezést az Elektronikai Intézet az azóta szerzett tapasztalatok alapján átszerkesztette, s azbesztcementgyártó gépekhez digitális vastagságmérő és szabályozó berendezéssé fejlesztette.

A vastagságméréssel szemben támasztott egyik legfontosabb követelmény

az érintés nélküli mérés. Éppen emiatt volt kézenfekvő, hogy valamilyen átvilágitási eljárást kellene alkalmazni. Ilyen berendezéseket már a legkülönfélébb iparágakban, pl. a papiriparban, alkalmaznak nagy sikerrel. Mig az ismert vastagságmérőknél folyamatosan üzemelő ionizációs kamrát használnak detektorként, az azbesztcementlapoknál ezek nem használhatók, mivel a nagy érzékenységü árammérők beállitási ideje nagy.

A szóban forgó mérőberendezésnél az azbesztcementlapok mérővilla ágai közt haladnak el, amely sugárforrást és mérőfejet tartalmaz. Egy-egy mérővillában három, egyenként 30 mCi aktivitásu ^{241}Am-forrás és három NaI kristályból és fotoelektronsokszorozóból álló mérőfej található. A detektorok kimenőjelét a 100 m távolságra felállitható mérőberendezéshez vezették. Itt az impulzusjelet erősitik, diszkriminátorral a megfelelő amplitudótartományba osztják, s a diszkriminátorok kimenőjelét összeadva és veszteség nélkül keverik.

Maga a mérés két lépésből áll: a lap méréséből és a hitelesitő mérésből. Mig a lap a mérővilla között fut, a detektor kimenő impulzusát számlálják. A mérési idő állandó /ezt a lap hosszához, illetve áthaladási idejéhez állitják be/. Az akkumulált impulzusszám forditva arányos a lapvastagsággal /illetve a sugárzás abszorpciójával a lapban/. Időben ezután következik a hitelesitő mérés, amelynél mindig ugyanaz az előadszorpció esik a sugár utjába. A mérés tartama független attól az impulzusszámtól, amelyet a lemez mérésénél regisztráltak. Megfelelő elektronikus kapcsolással a lemezvastagságot közvetlenül mm-ben kapják.

^{241}Am-sugárforrással, egy beállitással 3,5 - 7 mm vastagság ±1%-os linearizálási hibával mérhető. A beállitás változtatásával 3,5 - 25 mm-es tartomány mérhető.

Különösen kiemelkedő a mérési elv és berendezés azon tulajdonsága, hogy a legfontosabb rendszeres hibákat kompenzálja. A mérés eredménye a lap mérése és a hitelesitő mérés aránya, ezért a mérési érzékenység lassu változásának nincs befolyása az eredményre.

A mérés valódi hibája /a mutatott felületi tömeg átlagértékéhez viszonyitva/ kisebb, mint ±1%. Az egyes mérési eredmények statisztikus ingadozása átlag ±0,06 mm, a mért értékek 99%-a ±0,1 mm-en beül esik.

A lemez vastagságát ugy szabályozzák, hogy a lemezgép szürőhengerében változtatják az anyag adagolását. A szabályozás két nehéz részletkérdésével kell röviden foglalkoznunk. A lemezek vastagsága egyrészt gyors statisztikus ingadozást mutat a középérték körül, másrészt nagyon lassan változik az anyagadagolás változása következtében. A hasonló módon müködő, szokásos szabályozókat ezért nem lehet alkalmazni. A mérőberendezést ezért ugy szerelik fel, hogy igen pontosan sok mérési eredményt integrál, egyidejüleg az előirt értéktől való nagyobb eltéréseknél nagyobb előretartással szabályoz. Digitális elektro-

nikus kapcsolásokat fognak használni, amelyek paramétereit az azbesztcement-lapokat gyártó gép üzemi viszonyaihoz fogják illeszteni.

A vöcklaburgi Eternitmüvekben négy teljes vastagságmérő és -szabályozó berendezést állitottak üzembe. A vastagságértékek statisztikus kiértékelésére adatfeldolgozó rendszert próbáltak ki, amely PDP 8/L tipusu, Digital Equipment gyártmányu kis számitógépből* és a vastagságmérő és a számitógép közti Standard Interface-ből áll. Ez utóbbit az Elektronikai Intézet a CAMAC-rendszer nemzetközi szabványainak megfelelően készitette.

A folyamat pontosabb regisztrálására számitógéppel összekapcsolt CAMAC-rendszert állitottak üzembe az azbesztcementlap-gyártó iparban, amely a három-három mérőszakaszban mért vastagságértékeket külön-külön tudja kiértékelni.

A swierki Magkutató Intézet /LNK/ által kidolgozott háromtengelyü spektrométernél CAMAC-rendszert használnak a vezérlésre és adatrögzitésre.

Most dolgoznak egy CAMAC-rendszeren az acélipar számára.

AZ IZOTÓPALKALMAZÁSI INTÉZET

Mig az emlitett két intézetben a felsoroltakon kivül alapkutatás, egyetemi hallgatók kiképzése, belső szerviz stb. is folyik, az Izotópalkalmazási Intézet szinte kizárólag olyan ipari célu munkákkal, illetve megbizásokkal foglalkozik, amelyek nagyobbrészt valamilyen formában radioaktiv izotópok alkalmazásával járnak.

Az Intézet által végzett tevékenységet öt nagy csoportra oszthatjuk. Ezek: neutronlassitás, izotópos helyzetjelzés, röntgenfluoreszcencia-analizis, felületitömeg-meghatározás, és nyomjelzéses vizsgálatok.

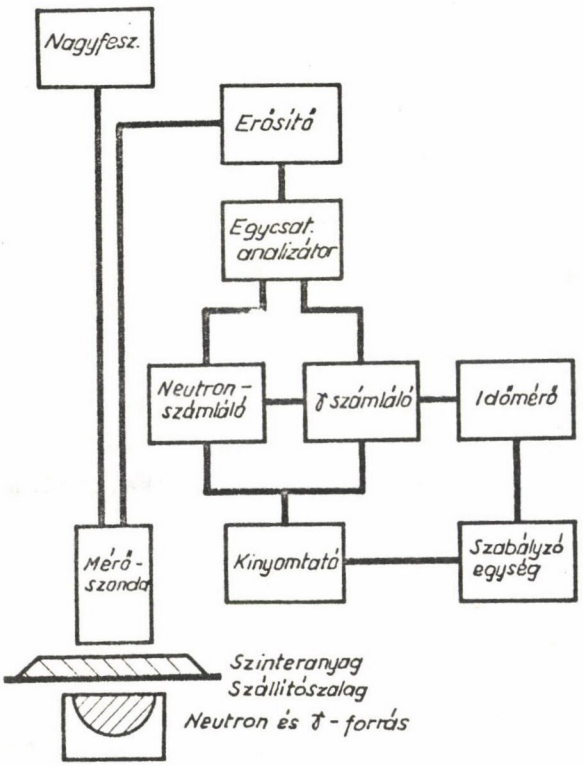
A neutronlassitással, azaz a nagy energiáju neutronoknak a vizsgálandó anyag atommagjávalvaló rugalmas ütközés révén bekövetkező lefékeződésével hidrogénkoncentrációt mérhetünk. Ezt az elvet már hosszabb ideje alkalmazzák nedvességmérésre az iparban.

Az Intézet az Egyesült Osztrák Vas- és Acélmüvek RT számára olyan *folyamatos érintés nélküli nedvességmérőt* dolgozott ki szállitószalagokon mozgó szinter-anyag mérésére, amely az anyag rétegvastagságától és az anyagi összetételtől függetlenül mér. Szinte valamennyi ilyen berendezés a visszalökődési elven müködik, amelynél lehuzóra van feltétlen szükség. Ennek révén azonban a szinteranyag vizhozzáadással történő fellazitását részben meggátolják, ezen kivül ellenőrizhetetlen vastagságváltozás lép fel. A mérési értékek még az egyidejü vastagságméréssel sem válnak pontossá. Emiatt az átsugárzási módszert választottuk. A szállitószalag alatt 1 Ci aktivitásu Am-Be neutronfor-

---

*E berendezés hasonló a magyar TPA/i/ -hoz. A szerk.

rást helyeztünk el, s 4, egyenként 0,1 mCi-s ^{137}Cs - γ-forrást, védő és szállitókonténerben. A szalag fölé szereltük a mérőszondát, amely litimmal 6,3 %-ban szennyezett üvegszcintillátorból, fotoelektronsokszorozóból és előerősitőből áll /3. ábra/. Ez a szonda γ-sugárzásra és termikus neutronokra egyaránt érzékeny /ez utóbbiaknál a megszólalási valószinüség 99%/. A kétfajta sugárzás által keltett elektromos impulzusokat jól el lehet választani egymástól. Ezután a γ-abszorpció és a neutrontermalizálás egyidejüleg kapott értékét félempirikus törvény alapján egymással elektronikusan összekapcsoljuk. Igy olyan értéket kapunk, amely mintegy 30 mm rétegvastagságtól kezdve független az anyagáramlástól. Ha végül a különféle szinterkeverékek "szárazértékeit" a kiértékelő egységbe konstansként betápláljuk, majd anyagkiválasztó kapcsoló révén a mért értékekkel elektronikusan összekapcsoljuk, a végső értékek függetlenek lesznek az anyagi minőségtől. A mérés pontossága jobb, mint 0,5 suly% nedvességtartalom.

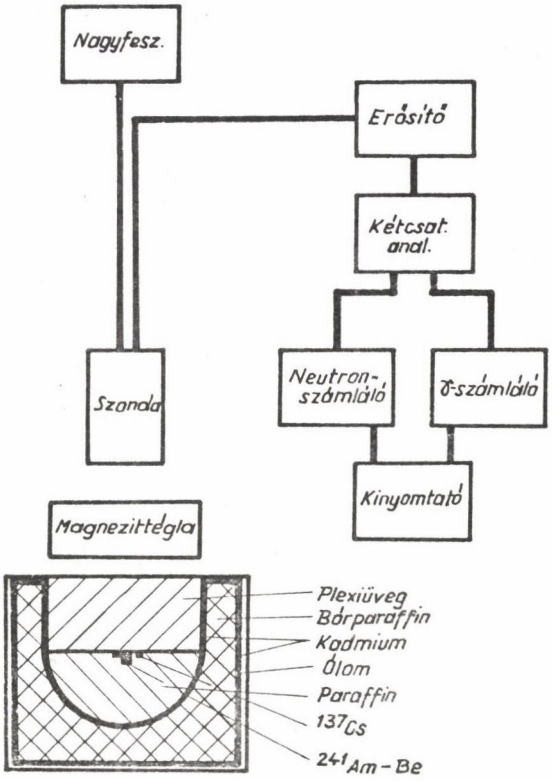


3. ábra

Szinteranyag nedvességét mérő berendezés vázlata

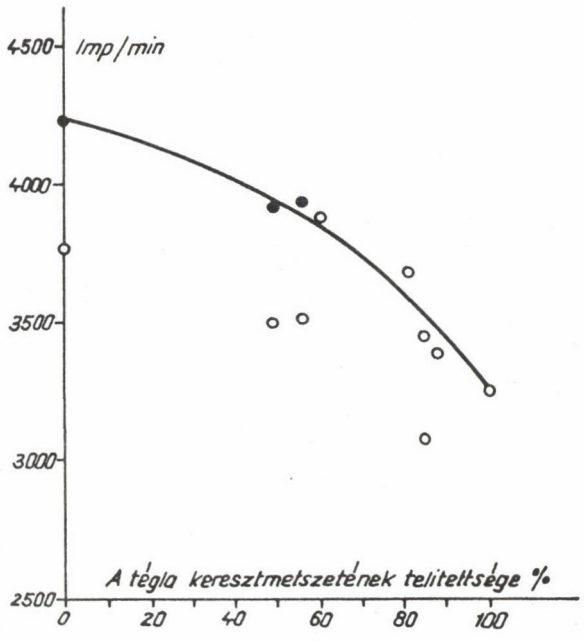
Másik feladatunk a *magnezittégla kátránnyal való telitettségi fokának roncsolás nélküli mérése* volt. Itt azt a tényt aknáztuk ki, hogy a termikus neutronokat a hidrogén erősen abszorbeálja. Az Am-Be forrás nagy energiáju neutronjait ezért először hirdogéntartalmu anyagon /plexi, paraffin és hasonlók/ átbocsájtva termalizáltuk, majd a magnezitkőre bocsájtottuk /4. ábra/. Az abszorpció mértéke a telitettséget adja meg. Ha γ-abszorpcióval vastagságot is mérünk, a tégla alakváltozásának hatását is korrigálhatjuk /5. ábra/.

A radioaktiv izotópos helyzetjelzést az ipar már régebben használja, különösen zárt, átlátszatlan tartályok teltségének mérésére. Az elv egyszerü: a sugárforrás fókuszált sugárzását detektorra bocsájtjuk. Ha a töltendő anyag eléri a sugárnyalábot, az abszorpció miatt a detektorra kevesebb sugárzás jut. Az Izotópalkalmazási Intézetben olyan berendezést dolgoztunk ki, amelylyel kis zárt tartályok, pl. tüzoltókészülékek, tintapatronok stb. teltségét 0,5 mm pontosan meg lehet határozni. Az ennek megfelelő értékhatárokat tetszés szerint állithatjuk be /6. ábra/.



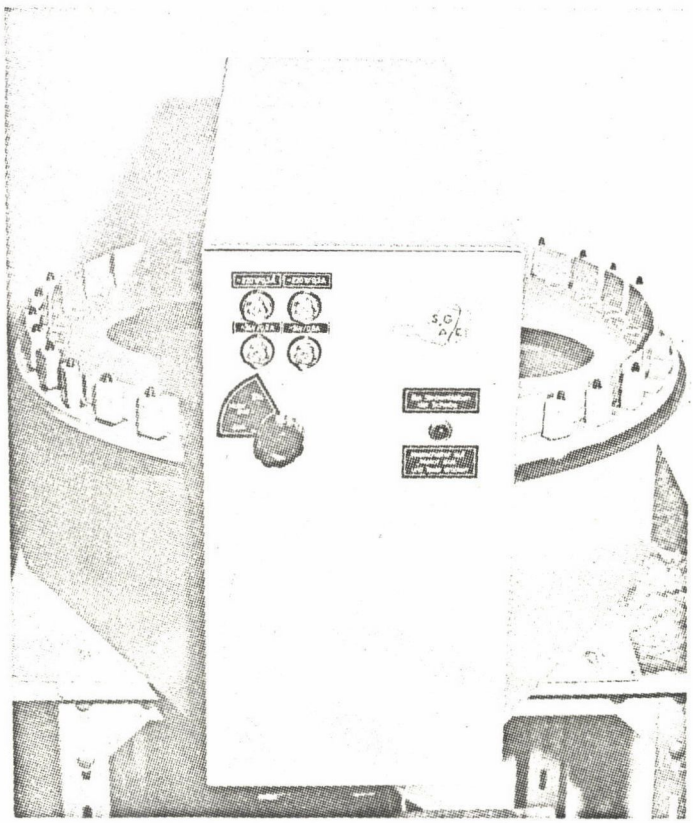
4. ábra

A mérőberendezés vázlata



5. ábra

Kátránytelitettség mérése



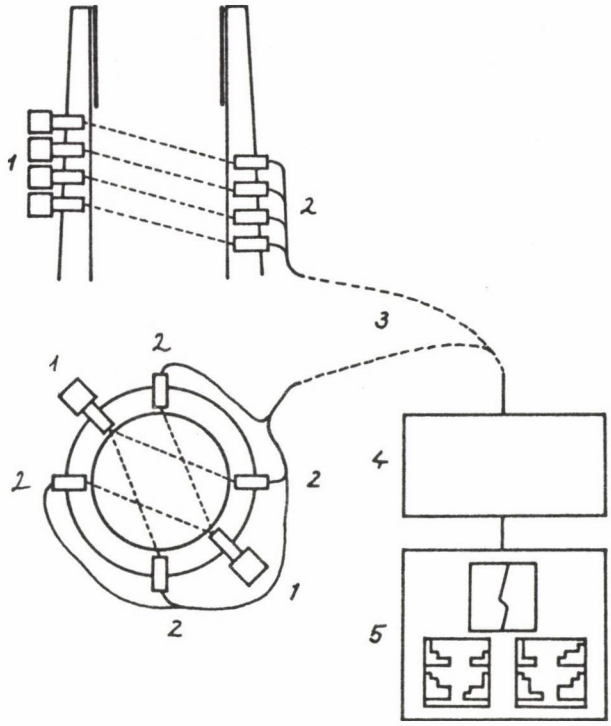
6. ábra

Patronokat teltség szerint automatikusan osztályozó berendezés

Jelenleg *a nagykohók profiljának és mélységének mérésére* szolgáló kisérleti berendezésen dolgozunk. Sugárzásos mélységméréssel már régebben foglalkozunk, ennél a berendezésnél azonban, a sugárforrás és a detektorok megfelelő elrendezésével, a profilról is képet kaphatunk, s bizonyos egyéb feltételekkel egyenletesebb felületet, s ezáltal jobb minőségü nyersvasat kaphatunk. A ^{60}Co-sugárforrásokat a hozzájuk tartozó detektoroknál magasabban helyeztük el /7. ábra/. Ha egy detektor csökkenő sugárintenzitást mutat, ebből tudhatjuk hogy az anyag a detektor előtt van. Igy meg tudjuk határozni a kohótöltet helyzetét; vizszintes sugárnyalábbal ez lehetetlen lenne. Négy "mérési sikot" tervezünk, négy-négy detektorral. Az értékek elektronikus kiértékelésével megállapitható egyrészt az átlagos teltség /"mélység"/, másrészt az adagolás aszimmetriája.

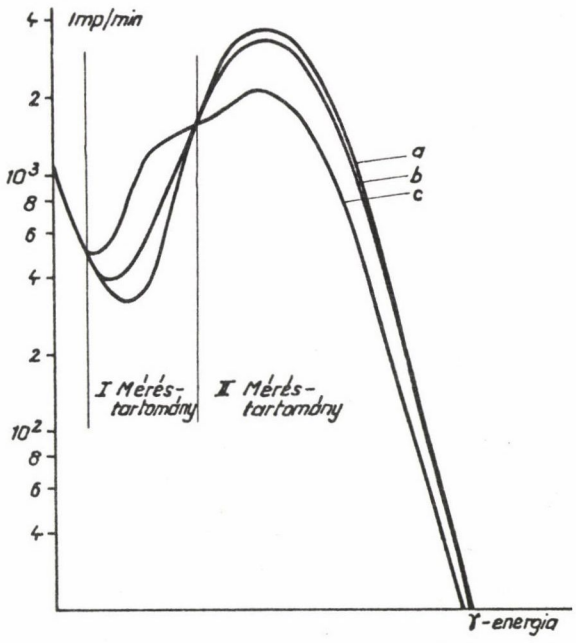
Függődaruk távolságának szabályozására azt az elvet hasznositjuk, hogy a sugárzás intenzitása a távolság négyzetével forditottan arányos. Ha tehát két, azonos sinen mozgó daru egyikére finom fókuszálásu sugárforrást /^{137}Cs/, másikára detektort szerelünk, elérhetjük, hogy bizonyos biztonsági távolságtól fogva a daru vezérlését elektronika vegye át, csökkentse sebességét, vészjelet adjon, majd egy minimális távolságnál véglegesen megállitsa. Biztonsági okokból két, párhuzamos berendezést tervezünk. A módszerek az optikai és az induktiv módszerhez képest az az előnye, hogy a piszkolódás és a korrózió nem okoz hibát.

A radioaktiv izotópos röntgenfluoreszcenciás analizist az utóbbi években mind nagyobb területen alkalmazzák az iparban. Elve a következő: a vizsgálandó anyagban sugárzással az elemre jellemző röntgensugárzást gerjesztenek, amelynek intenzitása jellemző az elemösszetételre. Ezt az analitikai és vizsgálati módszert már rég ismerik, de régebben drága röntgengépekre volt hozzá szükség. A radioaktiv izotópok viszont lehetővé teszik, hogy gyakorlatilag pontszerü gerjesztőforrással /amelyhez védelmen kivül másra nincs szükség/, részben hordozható, telepes analitikai készülékeket szerkesszenek az ipar és a kutatás számára. Az Izotópalkalmazási Intézet módszert dolgozott ki *papirmassza adalékanyag-tartalmának folyamatos, érintés nélküli mérésére*. Mivel Európában adalékanyagnak leginkább kaolint használnak, amely aluminium-sziliciumoxid vegyület, s mivel az aluminium és szilicium, rendkivül gyönge röntgensugárzása miatt, közönséges röntgenfluoreszcenciás analizissel nagyon nehezen mutatható ki - a sugárzás nagyobb részét már a detektorablak abszorbeálja -, uj módszert kellett kidolgozni. E szerint az ^{55}Fe-forrásból emittált Mn-K röntgensugárzás rézhengeren történő rugalmas visszaszóródásának abszorpcióját /a henger egyszersmind a papirt is vezeti/, valamint az adalékanyag atomjain tompaszögben szórt Mn-K röntgensugárzást mérjük /8. ábra/. Igy az érzékenységet jelentősen növelhetjük, s a mérés függetlenné válik a papir felületi sulyától /9. ábra/. A mérőfej 20 mCi ^{55}Fe-forrásból, vékony berillium-



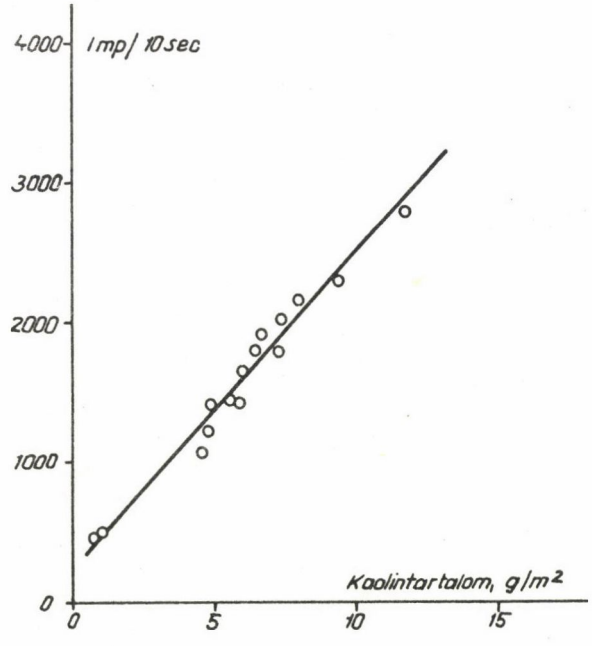
7. ábra

Kohók profiljának és mélységének mérésére szolgáló kisérleti berendezés vázlata



8. ábra

A regisztráló sugárzás energiaspektruma

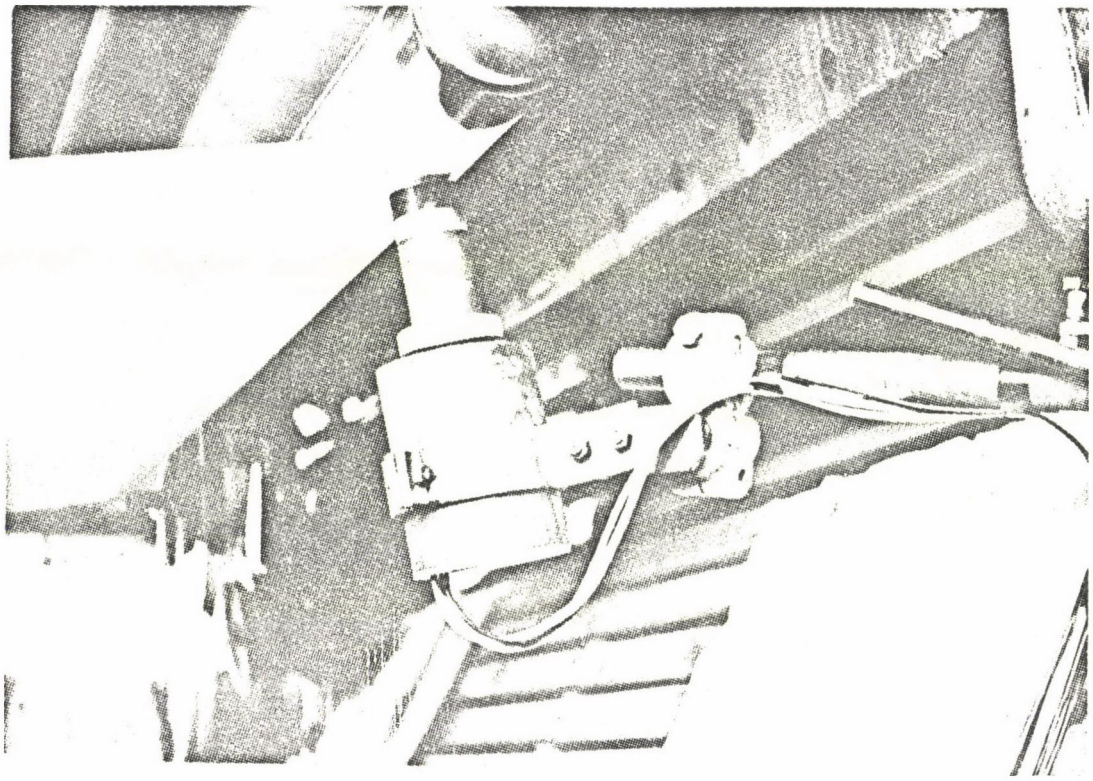


9. ábra

Az értékek függetlensége a kaolintartalomtól, felületi tömegre számitva

ablakos, 3"xl mm-es NaI szcintillátorkristályból, fotoelektronsokszorozóból és kiszaju előerősitőből áll /lO. ábra/. Az elektronikus feszültségforrás, a kiértékelő és regisztráló egység a legmodernebb integrált alapelemekből épül fel, s nagyon könnyen kezelhető /ll. ábra/. A sugárforrás 2,6 év felezési idejéből következő intenzitáscsökkenését ugyancsak ^{55}Fe-forrással felszerelt összehasonlitó egységgel, automatikusan korrigáljuk: a mérési idő kezdetben kb. 5 s, 2,5 év mulva kb. lO s. A mérési pontosság jobb, mint 0,5% kaolintartalom. Ugyanezzel a berendezéssel más adalékanyagok /TiO_2, $CaCO_3$ vagy $BaSO_4$/ is mérhetők.

Ugyancsak röntgenfluoreszcenciás analizisen alapul az Intézet által

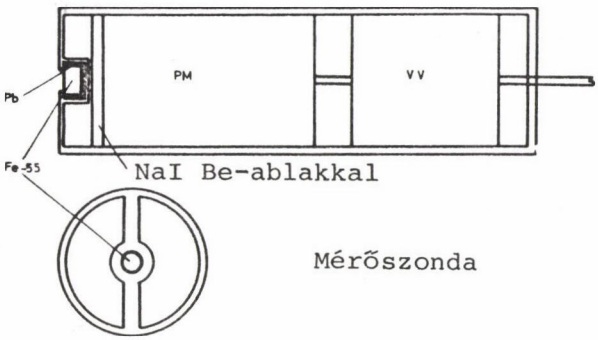


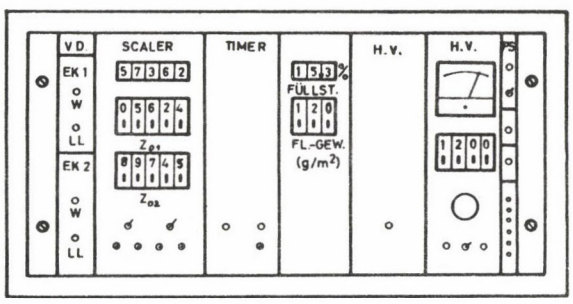
10. ábra

Adalékanyag-tartalmat folyamatosan mérő berendezés

kidolgozott berendezés *aluminiumcsövek lakk védőrétegének roncsolás nélküli meghatározására*. Mérőfeje a csőben vagy a csövön kivül egyaránt használható. A roncsolás nélküli vizsgálat előnyei a mérési idő jelentős rövidülésével párosulnak, igy a lakkrétegeket az eddiginél lényegesebben kiterjedtebben ellenőrizhetjük. A mérőfej argon+CO_2 töltésü, extrém vékony Mylar ablaku, átáramlásos proporcionális számlálócsőből és Ti-Zr fékezési sugárforrásból áll. A sugárzás által az aluminiumban gerjesztett K-röntgensugárzás a lakkrétegben különböző mértékben nyelődik el, igy a mért sugárintenzitás a védőréteg vastagságának mértéke. A berendezés mérőrésze négy hengeres görgőből áll. Egy a mérőfeje tartja, amely fölé a belső lakkréteg mérésekor a csövek borulnak; a másik, ezzel szemben álló görgő a külső lakkréteg mérésekor tartja a csövet, miközben a cső külső oldala a mérőfejen fekszik. A két oldalgörgő mindig azonos mérési geometriában tartja a csövet. A mérés pontossága 0,5 µ.

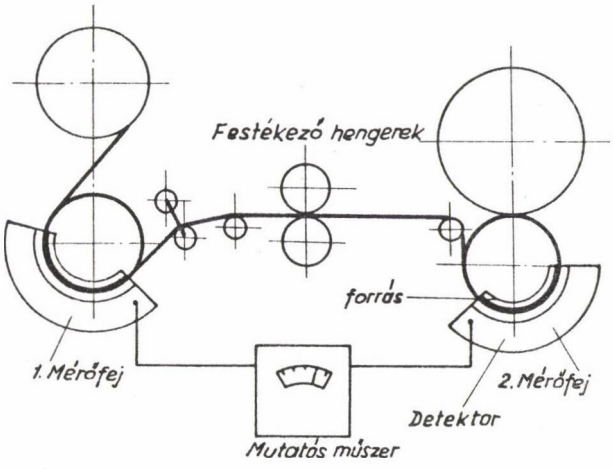
Az ipar néhány éve sikerrel használja az izotópos felületisuly- és vastagságmérőket. Egy példát már hoztunk föl erre az Elektronikai Intézet munkájának ismertetésénél. Az Izotópalkalmazási Intézet pl. olyan berendezést épitett, amely *irógépszalagok festékezését* méri, és a rávitt anyag vastagságát szabályozza. A berendezés két mérőfejből áll, amelyekben ^{147}Pm-szalagforrás és négy-négy GM-cső van. Mind az üres, mind a festékezett szalagot mérik /12. ábra/.

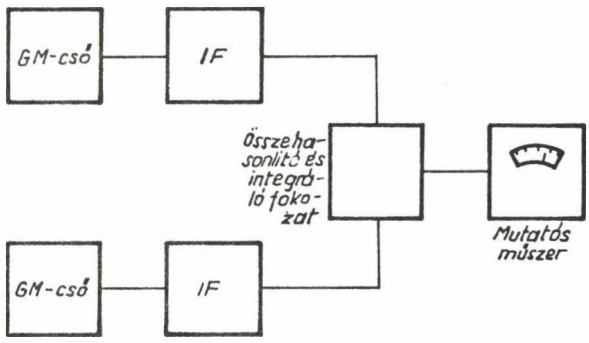




11. ábra

A mérőszonda és mutatós müszer vázlata





12. ábra

Irógépszalag festékezését mérő és szabályozó berendezés vázlata

A kért érték különbségéből kaphatjuk meg a festékezés erősségét. E módszernek az az előnye, hogy nemcsak a szalag vastagságából, hanem a sugárforrás bomlása miatti intenzitáscsökkenésből, a hőmérsékletingadozásból és a légnyomáskülönbségből származó sugárabszorpciós effektusokat is kompenzálja.

Az Intézet *dohányadag-mérő műszert* is kidolgozott. Ez dohánytöltő gépeken méri az anyag adagolását és összmennyiségét; a mérés pontosságát az időben erősen változó vagy szakaszos adagolás nem befolyásolja. A dohány szabadeséssel jut a mérőhelyre, amely 15 ^{90}Sr β-forrásból és 55 GM-csőből áll, s hossza kb. 800 mm. 5-5 szomszédos GM-cső impulzusát elektronika gyüjti össze. Igy az anyageloszlásnak a mérőhely hosszában fellépő egyenetlenségét ki lehet mutatni, s további elektronikai müveletekkel, az 5-10 s-os mérési időn belül, az adagolt összmennyiség folyamatosan megállapitható.

Az utolsó nagyobb terület, amelyet emliteni akarok, *a nyomjelzés*. Nagyobbára radioaktiv vagy inaktiv izotópokkal végzett olyan egyszeri vizsgálatokról van szó, amelyeket valamely folyamat pontos megismerésére vagy optimalizálására végzünk. Jellegzetes példa erre *az üzemanyag-adalékok tartálykocsiban vég-*

bemenő keveredése idejének megállapitása. A különféle cégek által az üzemanyagokhoz adott adalékokat gyakran először a töltött tartálykocsiba adják, abban a reményben, hogy a szállitás alatti természetes rázkódástól egyenletesen elkeverednek. Hosszabb utaknál ez valóban bekövetkezik, de a minimálisan szükséges szállitási idő, amely természetesen a pálya állapotától is függ, nem ismeretes. A vizsgálatban egy tartálykocsi kamrájában négy detektort helyeztünk el, majd a viszonylag kis energiáju /0,11 és 0,21 MeV/ γ-sugárzó ^{177}Lu-ot /felezési ideje 6,7 nap/ nitrát alakban alkoholban feloldottuk, toluollal kevertük, s az ugyancsak toluolban oldott adalékanyaghoz kevertük. A detektor által mért s irószerkezettel folyamatosan rögzitett adatokból megállapithattuk, mennyi idő multán mutatja valamennyi szonda ugyanazt az intenzitást. Ezen kivül különböző helyekről mintát is vettünk, amelyeket laboratóriumban pontosan megmértünk. A mérések igazolták a keveredés egyenletességét.

A nyomjelzésre másik példa egy *kisérleti radioaktiv szennyvizbepárló dekontaminációs tényezőjének megállapitása*. A primer körbe ^{24}Na izotópot adtunk $NaHCO_3$ alakjában, majd folyamatos mintavétellel meghatároztuk a primer kör és a kondenzátum fajlagos aktivitásának arányát. Közben változtattuk a paramétereket, hogy az optimális tényezőt érjük el, s igy a berendezést optimalizáljuk. Más elemekkel most végzünk inaktiv vizsgálatokat. Az elemek koncentrációját atomabszorpciós spektrofotométerrel mérjük.

Az Osztrák Kőolajigazgatóság RT részére folyamatosan aktiv és inaktiv *fúrólyukjelzést* végeztünk a célból, hogy megállapitsuk, kapcsolatban vannak-e egymással a különféle vizrétegek, s ezáltal felvilágositást kapjunk a furólyuk geológiai felépitéséről. Aktiv nyomjelzőként triciumot, inaktivként aranyat, diszpróziumot vagy európiumot adtunk az egyik vizrétegbe. Bizonyos idő elteltével a másik vizérből mintát vettünk. A triciummal jelzett mintákat először desztilláltuk, majd folyadékszcintillátorral mértük. Az aranyat, diszpróziumot és európiumot kémiai előkészités után aktiválásos analizissel határoztuk meg. A kimutathatóság határa kb. 0,01 ppb, azaz 10^{-9} %.

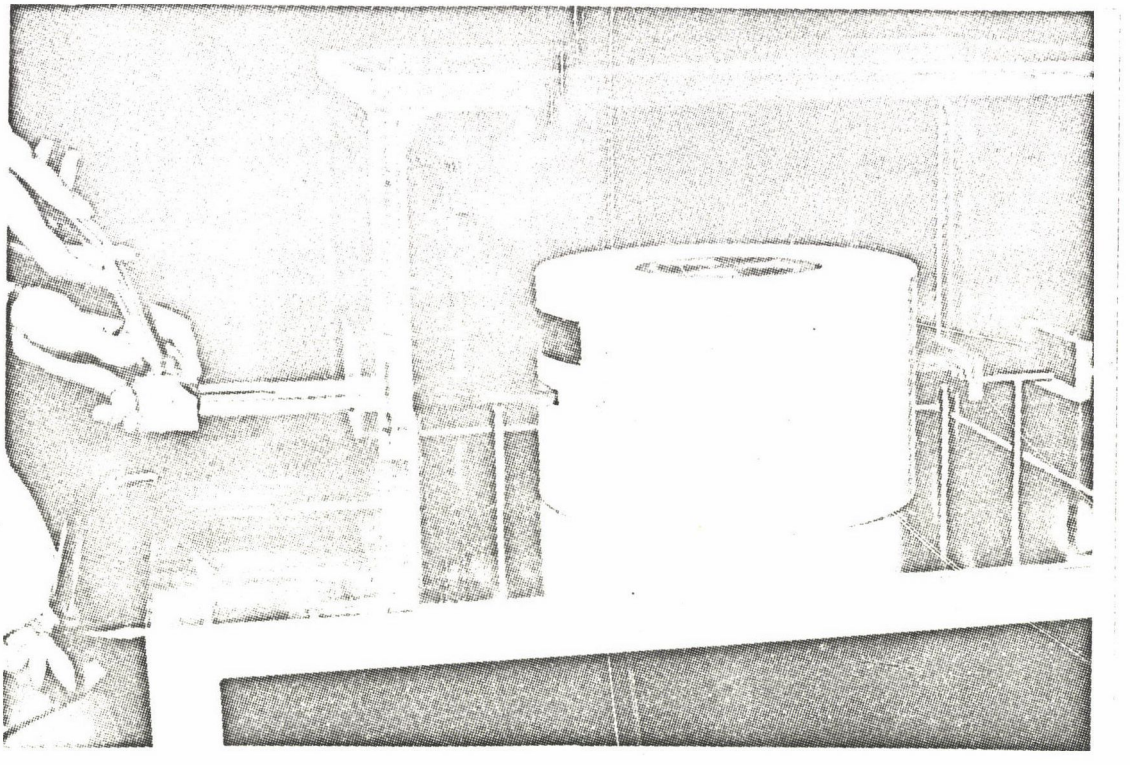
Kaldokemencék tűzálló bélésének kopását magnezitkő platina-iridium dróttal való jelzésével mértük. E drót reaktorbesugárzásánál ^{192}Ir izotóp keletkezik, amelynek γ-energiája 0,29 és 0,47 MeV közt van, felezési ideje 74,2 nap. A drótot préselés és égetés előtt a téglába helyeztük, majd vele együtt különböző helyekre a bélésbe épitettük. A tégla kopása révén az aktiv iridium az acélba jut. Az acél aktivitását mintákon mérjük, s szabvány dróttal hasonlitjuk össze. Viszonylag egyszerü számitással a bélés kopása közvetlenül milliméterben adódik. Ilymódon a kaldokemencét biztonsággal használhatják a minimális bélésvastagság eléréséig, s még időben előmelegithetik a frissen bélelt kemencét.

Végül a radioaktiv izotópos *lyukkeresést* emlitem. Ha egy vezetékrend-

szerbe, amelyben lyuk keletkezett, radioaktiv anyagot viszünk be, az áramlás révén a lyukon keresztül előbb-utóbb a vezetéket körülvevő közegbe jut, s ott felgyülemlik. A sugárvédelmi, környezetvédelmi és gazdasági szempontok miatt olyan izotópokat kell használni, amelynek nem tul nagy a felezési ideje, sugár- és biológiai toxicitása kicsi, jutányos az ára, s reaktorban könnyen előállitható. Folyadékszállitó rendszereknél mindenekelőtt ^{24}Na-ot, ^{82}Br-ot és ^{131}I-ot használnak. Szerves folyadékokat leginkább ^{83}Br-brómbenzollal vagy különféle naftenátokkal jeleznek. Gázvezetékeknél gyakran alkalmaznak ^{41}Ar-t, ^{85}Kr-t, ^{133}Xe-t és ^{82}Br-metilbromidot. Az alkalmazás lehetőségei a lakóházak egyszerü központi fütése és vizvezetéke tömitetlenségének felkutatásától nagy ipari tápvizvezetékek ellenőrzéséig, kis tartályok szivárgási helyének meghatározásától nagy üstök átvizsgálásáig széles skálán huzódnak, folyékony és gáznemü szállitott anyagnál egyaránt.

A módszer gazdasági előnye nyilvánvaló: nem kell az egész vezetéket átvizsgálni, csupán a lyuk környékét. Az utóbbi években az Izotópalkalmazási Intézet több ilyen lyukkeresést végzett, szinte valamennyit sikerrel. A sikertelenség legtöbbnyire a megrendelőtől kapott tájékoztatás elégtelenségéből fakadt.

Meg kell még emlitenem a mintegy 1 Mrad/h dózisintenzitásu, könnyü, szállitható, nagy teljesitményü β-besugárzó berendezést /IBITRON/, amelyet az Intézet dolgozott ki, és épitett meg /13. ábra/.



13. ábra

A nagyteljesitményü γ-besugárzó berendezés /IBITRON/

Most az egyik bécsi klinikán használják leukémiás betegek terápiás kezelésére. A vért müanyagcsőben, mellékáramban vezetik át a berendezésen. A betegek sugárterhelését azáltal csökkentik a minimálisra, hogy magát a besugárzókamrát /kb. 20 cm^3/ ugy árnyékolják, hogy a berendezés felületén /700x700x 400 mm/ a dózisintenzitás megfeleljen a nemzetközi sugárvédelmi normáknak.

Ennyiben akartam érzékeltetni az ipari izotópalkalmazás sokféleségét és azokat a lehetőségeket, amelyeket az utóbbi években a Seibersdorfi Kutatóközpont tárt fel és hasznositott az osztrák iparban.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 2. szám.

SZÉN 14-GYEL JELZETT HERBICIDEK HATÁSÁNAK ÉS BOMLÁSÁNAK VIZSGÁLATA SZŐLŐLEVÉLEN ÉS ALGÁN *

Kovács J., Vincze I,* I. Ali Haroun
Központi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet, Budapest,
*Semmelweis Orvostudományi Egyetem Orvosi Vegytani Intézete, Budapest

A 2,4,5-T és 2,4,5-TE felszivódásának és lebomlásának rétegkromatográfiás és autoradiográfiás vizsgálata. A szerek gátolják a fotoszintézist.

Исследования по влиянию и распаду гербицидов, меченных ^{14}C в листьях винограда и альгах
Новач, Й., Винце, И., И. Али Харун

Определения методами тонкослойной хроматографии и авторадиографии поглощения и распада гербицидов 2,4,5-Т и 2,4,5-ТЕ.Они препятствуют фотосинтезу.

Investigations on the Effect and Degradation of ^{14}C-Labelled Herbicids on Vine Foliage and Algas
Kovács, J., Vincze,I.,I.Ali Haroun

Thin layer chromatographic and autoradiographic determination of the uptake and degradation of herbicids 2,4,5-T and 2,4,5-TE. The agents hinder photosynthesis.

Az egyre nagyobb mértékben használt növényvédőszerek nemcsak felhalmozódásuk szempontjából, hanem eltérő biológiai hatásuk miatt is indokolttá teszik a mezőgazdasági termékek és élelmiszerek szennyezettségének részletesebb vizsgálatát.

A növényvédőszerek hatásosságának fokozásával előtérbe kerültek olyan kémiai analitikai problémák, amelyek - éppen a peszticidmaradék kis mennyisége miatt - klasszikus kémiai módszerekkel nem oldhatók meg. Az izotóptechnika lehetővé teszi, hogy kis mennyiségben használt, de növényfiziológiai szempontból még hatásos vegyületek felszivódását nyomonkövessük és a megjelenő bomlástermékeket meghatározhassuk.

E közlemény keretében a jelzett herbicidekkel végzett vizsgálatok néhány olyan eredményét ismertetjük, amely a nagyobb érzékenységü analitikai módszerek /pl. gázkromatográfia/ mellett részletes információt adnak a herbicidek felszivódásáról és bomlásáról.

---

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai Szakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás alapján. A levelek autoradiográfiás felvételeinek közlésére, müszaki okokból, nincs mód.

A közlemények[1,2] és nemzetközi konferenciák[3,4] anyagából egyértelmüen megállapitható, hogy a növényekre kifejtett hatás vizsgálata mellett indokolt részletes adatokat gyüjteni az egyes peszticidek időbeni felhalmozódásáról és lebomlásáról is.

Kisérleti programunkban a herbicidek közül az általánosan használt és ismert 2,4-D-t/2,4-diklor-fenoxiecetsavát/, 2,4,5-T-t/2,4,5-triklórfenoxiecetsavat/ és az ujabban ajánlott, hazai gyártmányu 2,4,5-TE-t /2,4,5-triklórfenoxietanolt/ vizsgáltuk és hasonlitottuk össze. A részletes vizsgálati adatokat nem ismertetjük, hanem elsősorban a radioaktiv szénnel jelzett, azonos növényfiziológiai hatásu 2,4,5-T és 2,4,5-TE felszivódási és lebomlási folyamatait jellemző eredményeket közöljük.

KISÉRLETI RÉSZ

Elővizsgálatok során a bevezetőben ismertetett vegyületekkel olyan kisérletet végeztünk, amelyek lehetővé teszik az egyes vegyületek algára és szőlőlevélre kifejtett hatásának értékelését.

Inaktiv és aktiv herbicidek felhasználásával, nemcsak a növénykárositó hatást, hanem az asszimilációs folyamatokat és tápanyagfelvételt is vizsgáltuk.

Levélhomogenizátum és alga felhasználásával, különféle kezelési feltételek mellett elemeztük a 2,4,5-T és 2,4,5-TE lebomlását. A folyamatok ellenőrzésére gázkromatográfiás és folyadékszcintillációs meghatározásokat végeztünk.

A rendelkezésünkre álló adatok alapján szükséges volt annak megállapitása, hogy a herbicidek különféle körülmények között hogyan szivódnak fel szőlőlevélben. E kisérletek céljaira kb. azonos méretü, azonos tőről származó leveleken 4 cm hosszu szárrészt hagytunk, és a levél nyelét 0,5 mg, 1 µCi aktivitásu 2,4,5-T vagy 2,4,5-TE tartalmu vizbe vezettük.

Egy-egy kisérleti sorban öt levéllel végeztünk párhuzamos vizsgálatokat.

EREDMÉNYEK ÉS ÉRTÉKELÉSEK

A 2,4,5-T felvételéről kapott eredményeket az 1. táblázatban foglaltuk össze.

1. táblázat

2,4,5-T felvétele szőlőlevélben

Kezelés ideje	Levélsuly	cpm	dpm	dpm
h	g	0,05 ml	teljes levél	1 g levél
3	1,2	2 109	$2,52.10^5$	$2,2.10^5$
6	0,87	2 022	$2,48.10^5$	$2,85.10^5$
12	1,3	9 602	$11,8.10^5$	$9,05.10^5$
24	1,07	4 068	$4,9.10^5$	$4,6.10^5$

A táblázatban közölt kezelési időpontoknak megfelelően, szürőpapirral való száritás után, a felszivódási vizsgálatokkal párhuzamosan, autoradiográfiás vizsgálatot is végeztünk. Az eredmények összehasonlitásából megállapithattuk, hogy a levélben felszivódott herbicid mennyisége 12 óráig fokozatosan nő, majd ezután csökken. Néhány későbbi kisérlet alapján egyértelmüen megállapitható volt, hogy egy bizonyos idő után az előzetesen felszivódott herbicidek bizonyos mennyisége a levélből a levélszárba visszaáramlik. Különösen jól látható ez az autoradiográfiás felvételekből. E pillanatban nem világos a jelenség magyarázata. Lehetséges ugyanis, hogy a levélben lejátszódó metabolizmus eredményeként a herbicidek bizonyos mennyisége elbomlik, és az oxidációs folyamatok következtében az oldalágban elhelyezkedő jelzett szénatom széndioxid formájában eltávozik. A levélszárba visszaáramló metabolitok az eredeti bomlatlan molekulával együtt jelentik a száron belüli kontaminációt, ugyanakkor a levélben, ennek megfelelően, a felvett herbicid mennyisége csökken.

Ez a hatás állapitható meg a herbicidekkel kezelt szőlőlevelek fotoszintézisének vizsgálati adataiból is.

A 2,4,5-TE-lal végzett kisérletek adatai az idő függvényében a 2,4,5-T értékeihez hasonlóak. A vizsgálati eredményeket a 2. táblázat szemlélteti.

2. táblázat

2,4,5-TE felvétele szőlőlevélben

Kezelés ideje	Levélsuly	cpm	dpm	dpm
h	g	0,05 ml	teljes levél	1 g levél
3	1,6	4 780	$6,9.10^4$	$4,3.10^4$
6	1,6	6 680	10.10^4	$6,2.10^4$
12	1,8	16 340	$22,1.10^4$	$12,0.10^4$
24	2,0	16 824	$22,8.10^4$	$11,4.10^4$

A 2,4,5-T fotoszintézistgátló hatásának vizsgálati adatai jól alátámasztják azt a megállapitást, hogy egy bizonyos idő után az érintett sejtek a herbicidek hatására elvesztik eredeti asszimilációs készségüket, de - az eltávozó herbicidek mennyiségi viszonyainak megfelelően - bizonyos sejtekben a széndioxid ismét megkötődik. Az adatok értékelését és értelmezését, valamint a kisérleteket folytatjuk, itt inkább azt kivántuk hangsulyozni, hogy egészen kis anyagmennyiségek felhasználásánál szőlőlevélben jól nyomon követhető a herbicidek vándorlása és hatása aktivitásméréssel. A fotoszintézist gátló hatás vizsgálati eredményeit a 3. táblázatban foglaltuk össze.

3. táblázat

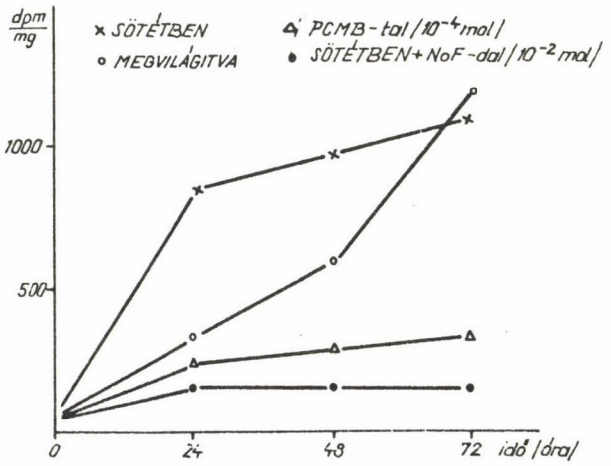
A fotoszintézis-gátlás vizsgálata szőlőlevélben $^{14}CO_2$-vel, 2,4,5-TE jelenlétében

Kezelés ideje h	Levélsuly g	cpm 0,2 ml	dpm 7,0 ml	dpm g levél	Gátlás %
0	1,85	44 222	$1,84.10^6$	$0,99.10^6$	-
3	1,3	23 109	$0,95.10^6$	$0,73.10^6$	26
3	1,4	24 900	$1,01.10^6$	$0,72.10^6$	27
6	1,5	18 219	$0,75.10^6$	$0,50.10^6$	49
6	1,4	19 875	$0,82.10^6$	$0,59.10^6$	41
12	1,3	10 107	$0,415.10^6$	$0,32.10^6$	65
24	1,8	13 243	$0,545.10^6$	$0,3.10^6$	69
24	1,5	19 559	$0,81.10^6$	$0,54.10^6$	55

A táblázat adatai alapján a gátlás mértékének előrehaladása jól értelmezhető, az autoradiográfiás képek alapján pedig megállapitható. Korábban jelzett vegyületek nélkül hasonló jellegü vizsgálatokra nem volt mód.

Figyelembevéve, hogy a herbicidek a felszinen elfolyó viz révén, esetleg az alkalmazás helyétől távolabb, nem kivánatos kontaminációt és károsodást idézhetnek elő (pl. vizben élő növényzetben való akkumuláció utján), alga felhasználásával kisérleteket végeztünk a herbicidfelhalmozódás nyomonkövetésére. Chlamydomonas Reinhardti $N^{o}90$ minus tipusu algakulturát használtunk. Az algák herbicidfelvételét különféle körülmények között vizsgáltuk: 10^{-4}M PCMB jelenlétében és 10^{-2}M nátrium-fluorid alkalmazásával, sötétben és megvilágitás mellett.

A vizsgálati adatokat a kezelési idő függvényében az 1. ábrán foglaltuk össze.



1. ábra

2,4,5-T felvétel algában

A 2,4,5-T felszivódását, mint az ábra adataiból megállapitható, a különböző vegyületek /PCMB és NaF/ szignifikánsan befolyásolják. Az alga növekedését gátló hatást vizsgálva azt találtuk, hogy a kémiailag tiszta 2,4, 5-T 0,025 g/l koncentrációban 55%-os gátlást eredményezett.

A 2,4,5-T és 2,4,5-TE metabolizmusát homogenizált szőlőlevélen és algaszuszpenzió felhasználásával vizsgáljuk. A vizsgálati adatokat autoradiográfiával kombinált vékonyréteg-kromatográfiás és gázkromatográfiás elemzésekkel összevetve értékeltük.

A herbicidek algahomogenizátumok esetében nem mutattak nagymértékü metabolizmust, de jól észlelhető bomlástermékek jelentek meg. Hasonló eredményt adtak a szőlőlevél homogenizátummal végzett vizsgálatok. A bomlástermékek természetére, kémiai szerkezetére vonatkozó további vizsgálatok folyamatban vannak. Az eddigi eredmények alapján megemlithetjük, hogy a jelzett vegyületekkel végzett rétegkromatográfiás és autoradiográfiás felvételek több olyan információval szolgáltak, amely nagyobb anyagmennyiség felhasználásával, nagyobb érzékenységü gázkromatográfiás detektorral sem volt elérhető.

ÖSSZEFOGLALÁS

Rövid tájékoztatást adtunk arról, hogy a jelzett vegyületek felhasználása milyen mértékben könnyiti a felszivódás és bomlási folyamatok elemzését növényi kulturákban.

A levélről készitett autoradiográfiás felvételekből és a vékonyréteg-kromatográfiával kapott elválasztások autoradiográfiás adataiból egyértelmüen kitünik, hogy a kis koncentrációban felhasznált és más módszerekkel nem elemezhető herbicidakkumuláció és bomlás a jelzett vegyületekkel kielégitő módon nyomonkövethető.

A herbicidek metabolizmusát jelen vizsgálati programunkban az oldallánccban és a gyürüben jelzett vegyületek felhasználásával tanulmányozzuk.

IRODALOM

1. *N.N.Melnikov*, Chemistry of Pesticides, Springer, New York, Heidelberg, Berlin 1971
2. *P.C.Kearney, D.D.Kaufman*, Degradiation of Herbicides, Marcel Dekker, New York 1969
3. FAO/IAEA Panel combined with a research coordination meeting on "Nuclear techniques for studying pesticide residues in food and environment". IAEA Headquarters, Vienna, 25-29 October, 1971
4. FAO/IAEA Research Co-ordination Meetings on Isotope Tracer Aided Studies on the Fate and Significance of Foreign Substances in Food and the Agricultural Environment. Ispra, Italy, 30 October - 1o November 1972

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 2. szám.

KÖRNYEZETI MINTÁK GAMMA-SPEKTROMETRIÁS MÉRÉSE ÉS A MÉRÉSI EREDMÉNYEK SZÁMOLÓGÉPES ANALIZISE *

Kovács M., Beleznay F-né, Andrási A., Erdélyvári I.
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, Budapest

Módszer max. 7 γ-sugárzó szennyező komponens kémiai elválasztás nélküli, gyors meghatározására. Hamvasztott élelmiszerminták elemzése.

Измерение γ-спектрометрией проб, взятых из биосферы, и обработка данных с помощью электронно-вычислительной машины
Новач, М., Белезнаи, Ф., Андраши, А., Эрдейвари, И.

Метод для быстрого определения не более 7 γ-излучающих компонентов без химического разделения. Анализ золы продуктов питания.

γ-Spectrometry of Enviromental Samples and the Evaluation of Data with Computer
Kovács, M., Beleznay, F., Andrási, A., Erdélyvári, I.

A method for the rapid determination of max. 7 γ-emitting components of contamination without chemical separation. Analysis of ashes of food samples.

BEVEZETÉS

Az utóbbi években mind gyakrabban vetődik fel környezetünk elszennyeződésének problémája, és ezen belül az a kérdés, hogy milyen nagyságrendü az a veszély, amelyet a mesterséges eredetü radioaktiv szennyeződés képvisel.

A környezeti minták - levegő, viz, talaj, növény, élelmiszer, stb. - vizsgálata során az esetek többségében bonyolult kémiai választási müveletet kell alkalmazni, amely fáradságos és időigényes. Bizonyos körülmények között - mint pl. a környezet nagyobbmérvü elszennyeződése nukleáris robbanások vagy reaktorbalesetek következtében - sorsdöntő lehet a szennyeződés jellegének és mértékének gyors meghatározása. Ilyen helyzetekben ismerni kell a radioaktiv izotópok minőségi, mennyiségi összetételét, differenciálni kell őket veszélyességük és megengedhető maximális koncentráció szerint, hogy a szükséges hatósági intézkedéseket időben megtehessük.

Szükség van tehát olyan módszerre, amely lehetővé teszi a szennyező komponensek gyors meghatározását anélkül, hogy az egyes izotópokat előzőleg valamilyen módon el kellene különitenünk.

---

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága ás a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai SZakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

Ha a mérendő mintáknak megfelelő standardspektrum-gyüjtemény áll rendelkezésünkre, akkor módunkban áll a γ-spektrumok felvételével a környezeti mintákat analizálni és a mérési adatokat elektronikus számológéppel feldolgozni. Ez a módszer természetesen nem helyettesiti a korszerü radioanalitikai eljárásokat, a kémiai elválasztási módszereket, különösen β-sugárzó izotópok és igen kis aktivitásszintek esetében.

Jelen dolgozatunkban ismertetni kivánjuk vizsgálati eljárásunkat, amelynek célja a környezeti minták γ-spektrometriás mérése és a mérési eredmények számológépes kiértékelése.

A KIÉRTÉKELÉSI MÓDSZER

A MÓDSZER ELVE

A sokcsatornás amplitudóanalizátorral felvett γ-spektrometriai mérési adatokat a DAS2 méréskiértékelő programmal dolgozzuk fel[1].

A program egyik része a több komponensből összetett spektrumok dekomponálását végzi a sulyozott legkisebb négyzetek módszere alapján, a következő kifejezés X_j szerinti minimalizálásával:

$$\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{N_i} \left(N_j - \sum_{j=1}^{m} X_j A_{i,j} \right)^2$$

ahol

X_j - a j-edik komponens keresett aránya,
N_i - az illesztés i-edik csatornájában mért beütésszám,
$A_{i,j}$ - a j-edik komponens hitelesitő egység spektrumának i-edik csatornájában lévő beütésszám,
n - az illesztéshez felhasznált összcsatornaszám,
m - a komponensek száma.

A program megadja az egyes komponensek részarányát és ezek szórását, maximálisan 7 komponensre, 512-csatornás mérés esetén. Az eljárás során a háttér is egy komponensnek számit.

A felvett teljes spektrumon belül az illesztési energiatartomány tetszés szerint választható meg.

Az eljárás alkalmas arra is, hogy az illesztésből az esetleges hibás adatokat kihagyja. Mód van a nagy statisztikus hibával felvett hitelesitő egységspektrumok másodfoku függvénnyel történő simitására.

A program minden esetben elvégzi az illesztés jóságának a próbáját is, az "1" várható értékü χ^2 kiszámitásával.

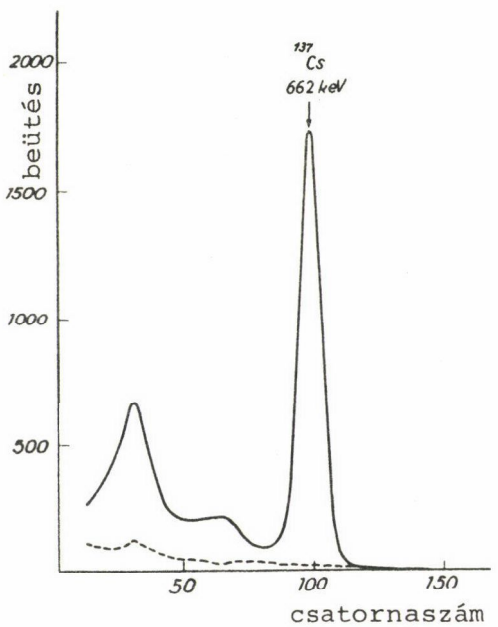
Az eredménylista formátuma és adatszolgáltatása olyan, hogy az - mint

már jegyzőkönyvezett eredmény - megőrizhető legyen. A gép kinyomtatja: a feladat azonositására szolgáló szöveget és kijelöléseket, az illesztés jóságának jellemzőjét: a χ^2 próba eredményét, az egyes komponensek részarányait abszolut egységben és ezek várható szórásait, valamint a mért és számitott spektrumok különbségét, az un. maradékspektrumot. A számszerü adatokon kivül a lebontott mintaspektrumot és a statisztikus hibára normált maradékspektrumot egy plotter fel is rajzolja.

A DAS2 ELJÁRÁS TESZTELÉSE

Tesztfeladatokkal ellenőriztük a DAS2 program teljesitőképességét. Megvizsgáltuk a hitelesitő egységspektrumok simitásának hatását, az illesztési tartomány optimális megválasztásának körülményeit, a kis arányban jelenlevő komponens meghatározhatóságát és a ténylegesnél több, illetve kevesebb komponens feltételezésével végzett számitások eredményeit[2].

A tesztvizsgálatok egy-két jellegzetes eredményét az 1. és 2. ábra szemlélteti.

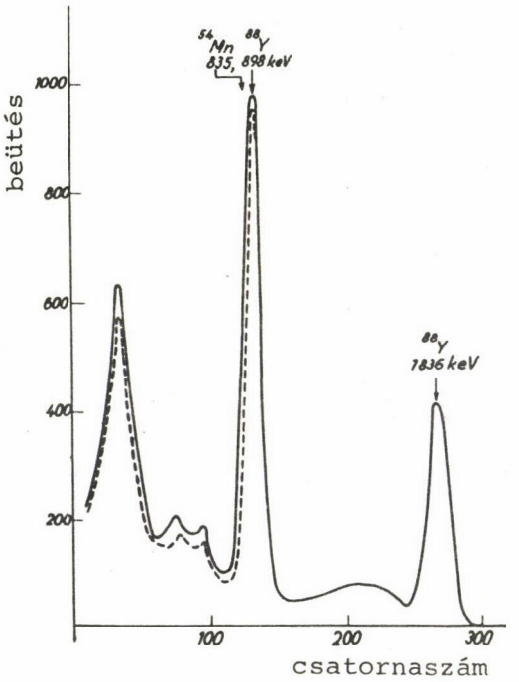


1. ábra

^{137}Cs + háttér γ-spektruma /2 komponens/

_____ ^{137}Cs + háttér

----- háttér



2. ábra

^{88}Y + ^{54}Mn γ-spektruma /2 komponens/ ^{88}Y : $^{54}Mn \simeq$ 10:1/

_____ ^{88}Y + ^{54}Mn

----- ^{88}Y

Az 1. ábrán egy ^{137}Cs /662 keV/ + háttér spektrumot mutatunk be, melyen a háttérkomponens spektrumát külön is feltüntettük. Ilyen intenzitásviszonyok mellett is a háttérkomponens az elméletileg mért értéktől csupán 2,1 %-ban tért el, ± 1 % számitott standard-deviáció mellett.

A 2. ábrán ^{88}Y /898, 1836 keV/ és ^{54}Mn /836 keV/ durván 10:1 arányu intenzitásviszonya mellett felvett összegspektrumát, valamint a ^{88}Y komponens spektrumát láthatjuk. A gyakorlatilag összeeső energiák és a kedvezőtlen intenzitásviszonyok ellenére az ^{54}Mn komponensre kapott érték csupán 3,7 %-kal tért el az elméleti értéktől, ami kisebb, mint a komponensre számolt ± 5,4 % standard deviáció.

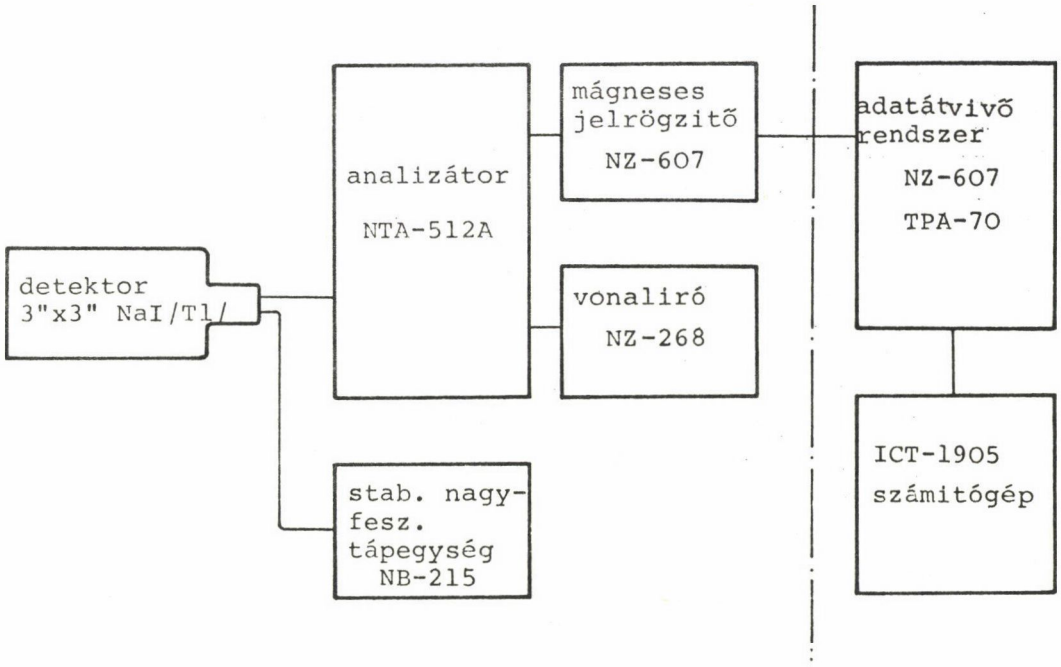
ICT - 1905 számitógépen az egy feladat kiértékeléséhez szükséges gépidő átlagosan 100 s.

A KÖRNYEZETI MINTÁK MÉRÉSE

A MÉRŐ BERENDEZÉS

A méréseket a KFKI-ban 1966-ban épitett kishátterü mérőhelyen és nagyérzékenységü szcintillációs mérőberendezéssel végeztük[3]. A 3" x 3"-es NaI/Tl/ detektorral müködő mérőhely háttere 198,1 ± 1,0 cpm, háttérindexe 0,575 cpm/cm^3 a 0,1 - 2,0 MeV energiatartományban[4].

A mérő és adatfeldolgozó módszer blokksémáját a 3. ábra mutatja.



3. ábra

A mérő- és adatfeldolgozó rendszer blokksémája

A SPEKTRUMKÖNYVTÁR ELKÉSZITÉSE

A gépi kiértékeléshez szükséges hitelesitő egységspektrumokból álló spektrumkönyvtárat az 1. táblázatban felsorolt izotópokból állitottuk össze. A könyvtár természetesen az igényeknek megfelelően tovább bővithető.

1. táblázat

A hitelesitéshez használt izotópok fontosabb adatai

I Z O T Ó P	Felezési idő	Jellemző γ-energia	A γ-kibocsájtás rel. gyak.
		MeV	%
a/*hasadási termékek*			
^{144}Ce - ^{144}Pr	286 d	0,133	11
^{131}I	8,04 d	0,360	80
^{106}Ru - ^{106}Rh	1,00 a	0,510 0,620	30 15
^{137}Cs	30,5 a	0,622	86
^{95}Zr - ^{95}Nb	65,0 d	0,730 0,760 0,768	55 43 100
b/ *aktiválási termék*			
^{60}Co	5,28 a	1,17 1,33	100 100
c/ *természetes izotóp*			
^{40}K	$1,3.10^{9}$ a	1,46	12

A hitelesitő mintákat az egyes izotópok standard oldatából suly szerinti, majd térfogati beméréssel készitettük.

A hitelesitést a következő mintafajtákra végeztük el:

- folyadékokra
  - 500 ml Marinelli-edény,
  - 2000 ml Marinelli-edény,
  - 500 ml hasáb alaku polietilén flakon,
  - 1000 ml hasáb alaku polietilén flakon;
- pépes, szilárd anyagokra
  - 100 ml hengeres polietilén edény,
  - 300 ml hengeres polietilén edény,
  - 500 ml hengeres polietilén edény;

- levegőszürőre 25 ^{m}/m ∅ Al-tálka,
  hamura, stb. 50 ^{m}/m ∅ Al-tálka.

A ^{40}K hitelesitő mintáit KCl vizes oldatából térfogatméréssel-, só alakban sulyméréssel készitettük. A háttérkomponens egységspektrumának felvételéhez "öreg" desztillált vizet alkalmaztunk.

A standard oldatok fajlagos aktivitásának hibája kisebb volt ± 5 %-nál. A suly és térfogat szerinti bemérések becsült összhibája kisebb volt ± 3 %-nál. A mérési időket és aktivitásokat ugy választottuk meg, hogy a dekomponáláshoz statisztikailag értékelhető hitelesitő spektrumokat kapjunk.

KÖRNYEZETI MINTÁK MÉRÉSE

A mérőberendezés és a módszer tesztelését környezeti minták esetére öt fent ismertetett izotóp ismert arányu keverékével, különböző mérési geometriák mellett végeztük el.

Méréseket végeztünk a kimutatási határ becslésére.

Vizsgáltuk többfajta és különböző évekből származó hamvasztott élelmiszerminták radioaktiv anyagtartalmát, és a kapott aktivitásértékeket összehasonlitottuk a kémiai elválasztásos módszerrel mért eredményekkel. A hamvasztott élelmiszermintákat és a kémiai analitikai módszerrel kapott eredményeket a Fővárosi Vegyészeti Intézet bocsátotta rendelkezésünkre.

EREDMÉNYEK

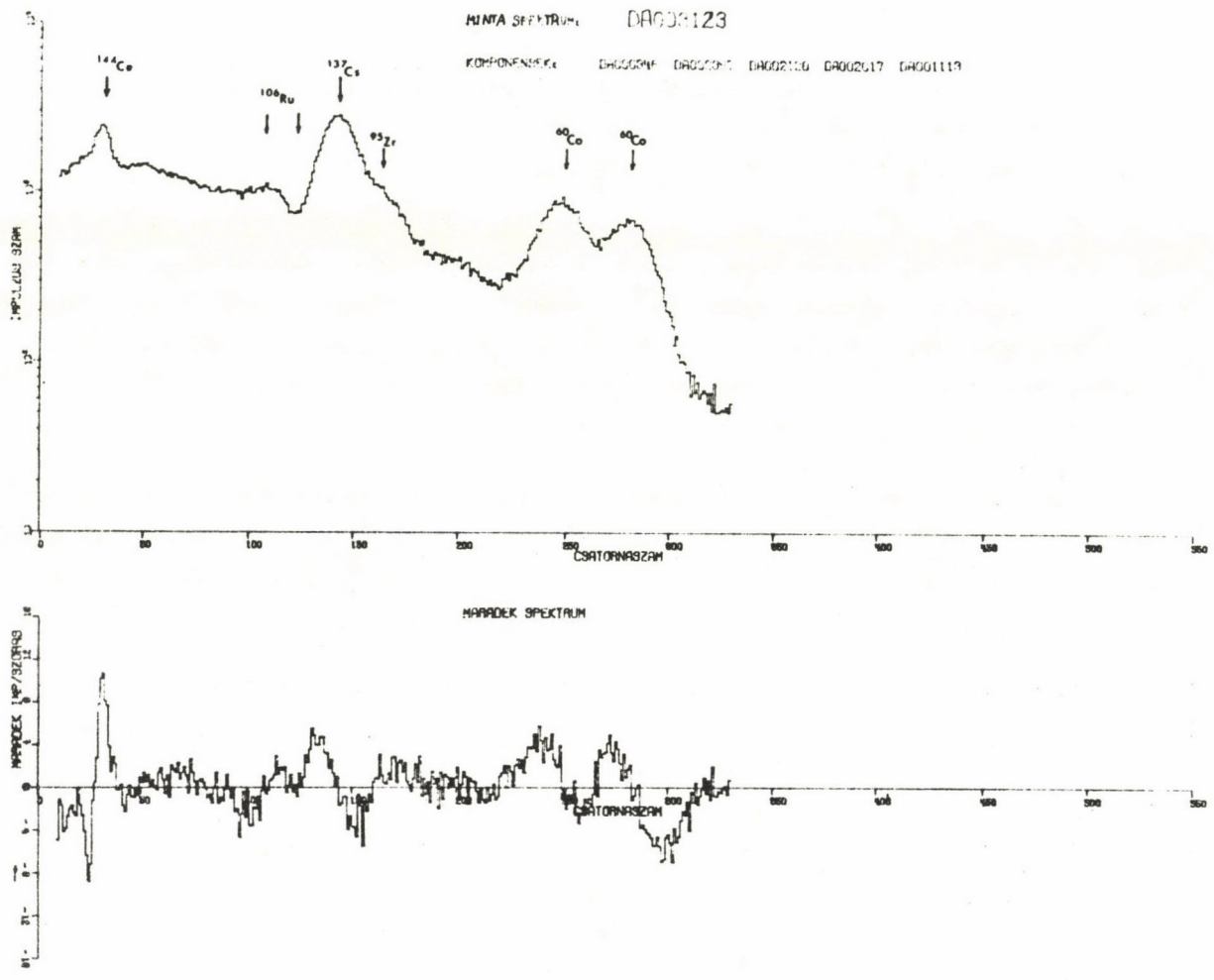
TESZTVIZSGÁLATOK

Ismert aktivitásu izotópok keverékével mért összegspektrumokat dekomponáltunk számológéppel, a spektrumkönyvtár hitelesitő spektrumainak felhasználásával. A 4. ábrán ilyen keverékspektrum és a dekomponálás utáni normált maradék látható. A bemért és a számitott aktivitások értékeit hasonlitottuk össze a 2. táblázatban. Látható, hogy a mért és a számitott aktivitások közötti relativ eltérés csupán néhány százalék.

Figyelembe véve az öt izotópkomponens spektrumának egymásra való rakódásából származó kedvezőtlen viszonyokat, a viszonylag nagy statisztikus hibát, a bemérések hibáit, valamint a mérési feladat pontossági igényét, a dekomponálást sikeresnek tekinthetjük, és igy a spektrumkönyvtárban felvett spektrumokat további dekomponálások alapspektrumaiként fogadhatjuk el.

A KIMUTATÁSI HATÁR BECSLÉSE

A γ-spektrometriás módszer érzékenysége hosszabb mérési idők és kevesebb komponens esetében nő. Vizsgálatokat végeztünk 1000 s-es mérési időknél



4. ábra

^{144}Ce, ^{137}Cs, ^{106}Ru-^{106}Rh, ^{95}Zr-^{95}Nb, ^{60}Co keverékspektruma és a számitógépes dekomponálás után - a statisztikus hibára normált - maradékspektrum

a kimutatási határ meghatározására két szélső esetben: a háttérre rakódó egykomponensre, illetve több intenziv komponens Compton-tartományára szuperponálódó, kis γ-energiáju izotóp esetében.

Egykomponens kimutatási határát ^{40}K-nál vizsgáltuk. A vizsgálat eredményét a 3. táblázat tartalmazza. Eszerint az 50 mm ∅ Al-tálkán 1000 s alatt kb. 0,2 gK, kb. 20 % pontossággal még kimutatható.

Az 5. ábrán bemutatjuk a 0,132 gK-nak megfelelő spektrumot és maradékspektrumot.

A lebontás eredménye igen jónak mondható, különösen, ha figyelembe vesszük,

2. táblázat

Keverékspektrumokon végzett teszt-vizsgálat mérési eredményei

Mintatartó	Mérési idő	Komponensek	Bemért aktivitás	Számitógépes dekomponálással kapott aktivitás	Relativ eltérés
	s		nCi	nCi /± σ/	%
1000 ml polietilén edény	500	^{144}Ce-^{144}Pr	53,6	49,7 ± 5,2	-7,3
		^{137}Cs	24,2	25,5 ± 1,3	+5,4
		^{106}ru-^{106}Rh	72,6	66,1 ± 3,1	-8,9
		^{95}Zr-^{95}Nb	56,7	62,3 ± 1,6	+9,9
		^{60}Co	20,2	18,7 ± 0,4	-7,5
50 mm ϕ aluminium tálka sikgeometria	500	^{144}Ce-^{144}Pr	33,9	31,7 ± 1,5	-6,5
		^{137}Cs	26,4	28,6 ± 0,5	+8,2
		^{106}Ru-^{106}Rh	18,5	19,5 ± 0,9	+5,8
		^{95}Zr-^{95}Nb	94,3	93,8 ± 0,4	-0,5
		^{60}Co	20,8	21,0 ± 0,3	+1,2
100 ml-es polietilén edény	500	^{144}Ce-^{144}Pr	19,6	18,5 ± 1,5	-5,5
		^{137}Cs	63,8	63,8 ± 0,5	0,0
		^{106}Ru-^{106}Rh	48,0	45,3 ± 0,9	-5,7
		^{95}Zr-^{95}Nb	39,2	39,0 ± 0,5	-0,4

3. táblázat

A háttérre szuperponált egykomponens /^{40}K/ kimutatási határa γ-spektrometriás vizsgálatnál

Mintatartó	Mérési idő	Bemért kálium-tartalom	Számitógéppel számolt kálium-tartalom	Relativ eltérés	
	s	gK	gK ± σ	%	xσ
50 mm ϕ Al-tálka, mint sikforrás	1000	4,24	3,83 ± 0,18	-9,6	-2,3
	1000	1,32	1,21 ± 0,11	-8,9	-1,0
	1000	0,424	0,36 ± 0,07	-14,4	-0,9
	1000	0,132	0,16 ± 0,07	+24,2	+0,4

hogy a ^{40}K dekomponálását zavarja a háttérnek a szcintillációs kristálytól származó saját ^{40}K-tartalma is.

Megvizsgáltuk, hogy a 100 ml-es hengeres polietilén edényben a ^{144}Ce, ^{137}Cs, ^{95}Zr-^{95}Nb, ^{106}Ru-^{106}Rh keverékspektrumban a legkedvezőtlenebb helyen fekvő ^{144}Ce-nak milyen a kimutathatósága. Szintén 1000 s-os mérési időket választva azt találtuk, hogy a többi komponens aktivitásának mintegy egytizede elfogadható hibával még meghatározható.

HAMVASZTOTT ÉLELMISZERMINTÁK VIZSGÁLATA

A módszer gyakorlati alkalmazásaként 1964 és 1969-ből származó hamvasztott élelmiszermintákat elemeztünk. Az igen kis aktivitások miatt növelnünk kellett a mérési időt.

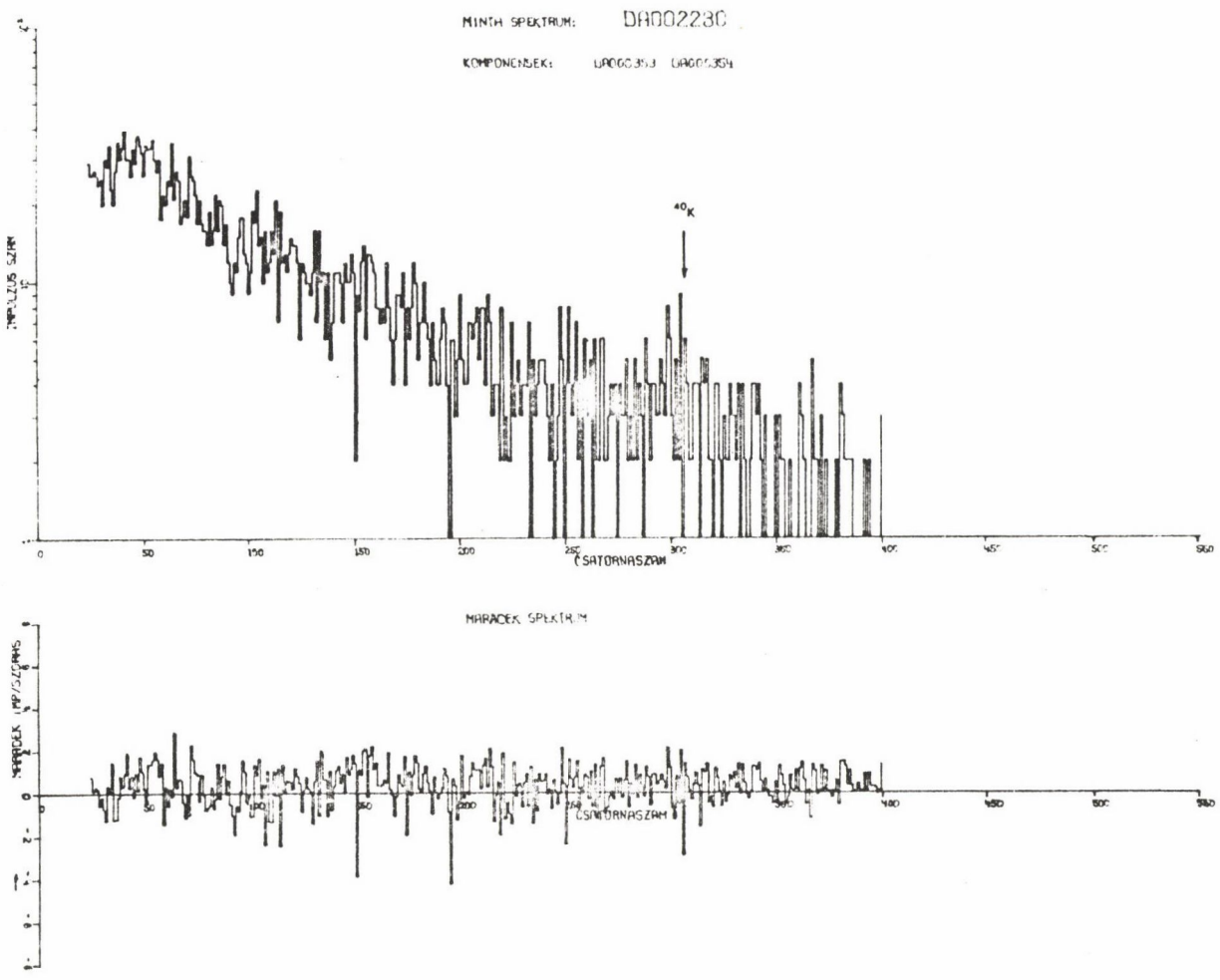
A vizsgálati eredményeket a 4. táblázat tartalmazza.

4. táblázat

Hamvasztott élelmiszermintákon párhuzamosan végzett γ-spektrometriás és kémiai elválasztás utáni aktivitásmérés eredményei

Módszer		Sóska 1964	Saláta 1964	Siló 1964	Spenót 1969	Tej 1969
	Mérési idő s:	10 000	10 000	50 000	12 000	50 000
	^{40}K					
γ-spektrometriás	gK/g hamu:	0,286	0,265	0,241	0,262	0,208
	± σ	±0,014	±0,011	±0,014	±0,010	±0,010
	^{137}Cs					
	pCi/g hamu:	5,3	3,4	16,2	14,6	2,1
	± σ	±0,9	±0,7	±1,2	±6,4	±0,6
	^{40}K					
	gK/g hamu:	0,260	0,230	-	0,194	0,174
Kémiai elválasztás /*/	± σ	±0,015	±0,015		±0,015	±0,015
	^{137}Cs					
	pCi/g hamu:	4,0	1,2	-	2,2	1,7
	± σ	±0,5	±0,2		±0,3	±0,2

/*/ A táblázatban a γ-spektrometriás mérés időpontjára /1971/ vonatkoztatott adatok szerepelnek



5. ábra

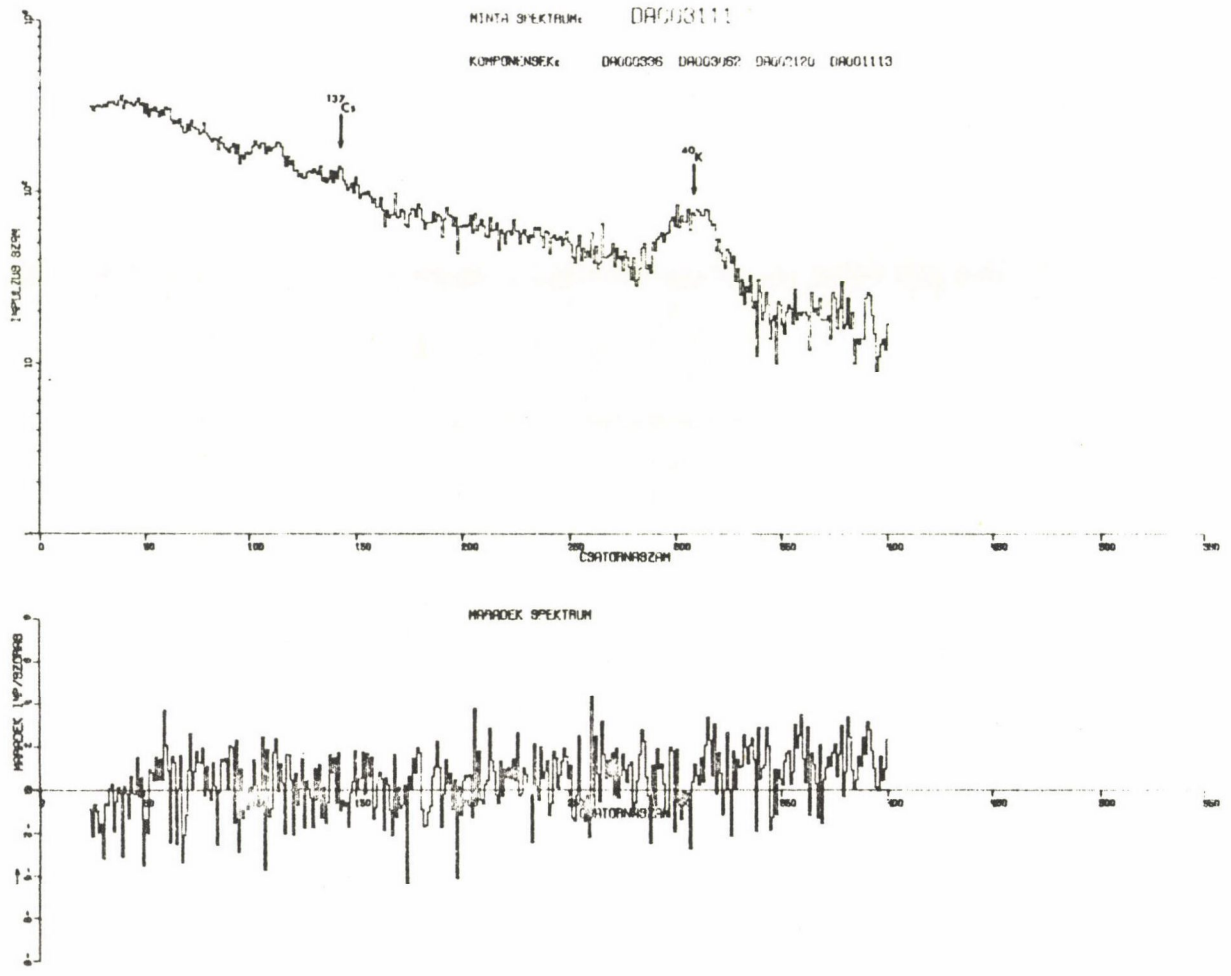
0,132 g káliumot tartalmazó, 50 mm ϕ sikforrás γ-spektruma és a számitógépes dekomponálás utáni maradékspektrum

Az eredményeket összevetettük a Fővárosi Vegyészeti Intézet kémiai elválasztásos módszerrel mért vizsgálati eredményével. Azt találtuk, hogy a két módszerrel mért aktivitásértékek csaknem minden esetben a két meghatározás 2σ-ján belül megegyeztek.

A 6. ábrán élelmiszerminta γ-spektruma és a dekomponálás utáni maradékspektruma látható.

ALKALMAZÁSI LEHETŐSÉG

A környezeti minták γ-spektrometriás mérésére és a mérési eredmények spektrumdekomponálásos elven történő gépi kiértékelésére alkalmazott módszer jóságát, megbizhatóságát, eredményeink igazolják.



6. ábra

Hamvasztott élelmiszerminta mért γ-spektruma és a számológépes dekomponálás után kapott normált maradékspektrumok

A módszer előnye, hogy

- alkalmazásával különböző halmazállapotu, kis fajlagos aktivitásu minták mérése, gyors gépi kiértékelése lehetséges;
- a méréshez nem szükséges a begyüjtött mintákat előzetesen kémiailag feldolgozni;
- több komponensü γ-sugárzó szennyezőket együttesen lehet meghatározni maximálisan hét összetevőig;
- megadja az egyes komponensek várható hibáját;
- a kiértékelési eredményeket a kivánt speciális adatszolgáltatással és rajzzal együtt jegyzőkönyvezett formában adja;

- számos fárasztó és időigényes manuális munkától mentesit.

A módszer hátránya, hogy

- csak γ-sugárzó szennyezők mérésére alkalmas;
- a kis hátterü mérőmühely és a müszerek időbeli stabilitásával szemben fokozott követelményt támaszt;
- a kiértékeléshez spektrumkönyvtár és elektronikus számológép szükséges.

A módszer elsősorban olyan helyzetekben alkalmazható eredményesen, amikor a legkülönfélébb minták tömeges feldolgozása szükséges. Előnyösen használható pl. mozgó laboratóriumokkal begyüjtött minták azonnali γ-spektrometriás mérésére, adatrögzitésre, majd az adatok központi helyen komputerrel történő gyors feldolgozására.

Természetesen alkalmazható mindazon helyeken, ahol - manapság nem tulzott igényként - elektronikus számológép áll rendelkezésre, és a többkomponensü radioaktiv izotópkeverékek gyors meghatározása a követelmény.

\+ + +

Ezuton mondunk köszönetet az Országos Mérésügyi Hivatalnak a standard oldatok elkészitéséért, a Fővárosi Vegyészeti Intézetnek a hamvasztott élelmiszerek és vizsgálati eredményeik rendelkezésre bocsájtásáért, a KFKI Számitástechnikai Osztályának az adatátvitel és feldolgozás során nyujtott segitségéért és Burghardt Jánosnénak, hasznos közremüködéséért.

IRODALOM

1. *Andrási A., Kötél Gy.*, Számológépes spektrumdekomponálás, Report KFKI-71-16.
2. *Fehér I., Andrási A.*, Computer Data-Processing for a Whole-Body Counter, Proc. Symp. Assessment of Radioactive Organ and Body Burdens, Stockholm, Nov. 22-26, 1971. /Megjelenés alatt/ Report KFKI-71-64.
3. *Szende G.*, Hitelesitő mérések nagy érzékenységü gamma-spektrométerrel. M.Kém.F. 76 /1970/ 385
4. *Andrási A., Beleznay E.*, Szcintillációs detektorok háttérvizsgálata, Report KFKI-71-50.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 2. szám.

MÉRÉSEK A LÉGKÖR RADIOKRIPTON-TARTALMÁNAK NÖVEKEDÉSÉRE VONATKOZÓAN *

Csongor É.
MTA Atommag Kutató Intézete, Debrecen

A külföldön 1958-ban, hazánkban Debrecenben 1966-ban kezdődött mérések eredményei. A ^{85}Kr-koncentráció növekedése egyértelműen az atomerőműveknek és a reprocessáló üzemeknek tulajdonítható.

Измерения по повышению концентрации ^{85}Kr в атмосфере
Чонгор Э.

Результаты измерений ^{85}Kr, начатых в 1958 за рубежом, и в 1966 в Дебрецене /Венгрия/. Повышения концентрации ^{85}Kr несомненно вызвано АЭС и заводами по переработке ТВЭЛ.

Measurements on the Raising Level of Radiokrypton Concentration of Atmosphere
Csongor, É.

Results of ^{85}Kr measurements since 1958 /foreign data/ and 1966 /measurements in Hungary, Debrecen/. Increase of its concentration can undoubtedly be attributed to nuclear stations and reprocessing plants.

A légkörben többféle radioaktiv anyagot találhatunk. Egy részük gázalakban van jelen, más részük aeroszolokhoz tapadva lebeg.

Az atmoszféra radioaktiv anyagtartalma két nagy csoportba osztható:

1. az emberi tevékenységtől függetlenül jelenlevő radioaktiv anyagok:
   a/ a természetes radioaktiv anyagok gázalaku termékei,pl. Rn, Tn és ezek bomlástermékei;
   b/ a kozmogenikus radioaktiv anyagok, amelyek a kozmikus sugárzásnak a földi légkör gázaival való kölcsönhatása révén keletkeznek /^{14}C, T, ^{39}Ar, ^{7}Be/.
2. A légkörnek az emberi tevékenységből származó radioaktiv szennyezettsége;
   a/ az atomfegyver és más /főként meteorológiai/ kísérletek révén keletkező nagy mennyiségü mesterséges radioaktiv anyag, hasadási, illetve aktivációs termék;

---

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai Szakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

b/ sok, elsősorban gázalaku termék a reaktorok üzemeltetése és főként a nukleáris fütőelemek feldolgozása, reprocesszálása révén.

Ha az előbbiekben emlitett bármely folyamat révén a légkörbe radioaktiv anyag jut, aeroszolokhoz tapadva vagy a csapadékkal együtt, vagy szedimentációval a troposzférából hamarosan a föld felszinére jut /kivéve a nemesgázokat, amelyek az atmoszférában maradnak/.

Nehéz magok hasadásakor 36 nemesgáz izotóp keletkezik. Ezek részben stabilak, részben rövid felezési idejüek, kivéve a ^{85}Kr-ot, amelynek felezési ideje 10,76 év,[1] igy a hasadási termékek közül egyedül ez jelentkezhet a *légkör* tartós szennyezőjeként.

A ^{85}Kr kimutatása és kvantitativ mérése a légkörben speciális analitikai problémát jelent, egyrészt, mivel nemesgáz, másrészt, mivel magának a Kr gáznak a koncentrációja az atmoszférában igen kicsi /1,14 ppm/.

A ^{85}Kr jelenlétét a természetes háttérsugárzásban a hasadás mesterséges előállitása előtt kisérletileg nem is tudták kimutatni. A természetes uton /pl. spontán hasadás, illetve légköri ^{84}Kr neutronbefogása révén/ keletkező ^{85}Kr mennyiséget csak becsülték. Értékének felső korlátjául 5.10^{-6} pCi/m^3 levegő értéket kaptak[9]. A ^{85}Kr tehát, mint légköri szennyező, az átlagos 100 pCi/m^3 levegő nagyságrendü légköri Rn koncentráció mellett teljesen elhanyagolható volt mindaddig, mig a hasadás gyakorlati alkalmazása, t.i. az atomfegyver-kisérletek és az atomipar révén, jelentős mennyiségü ^{85}Kr nem került a légkörbe.

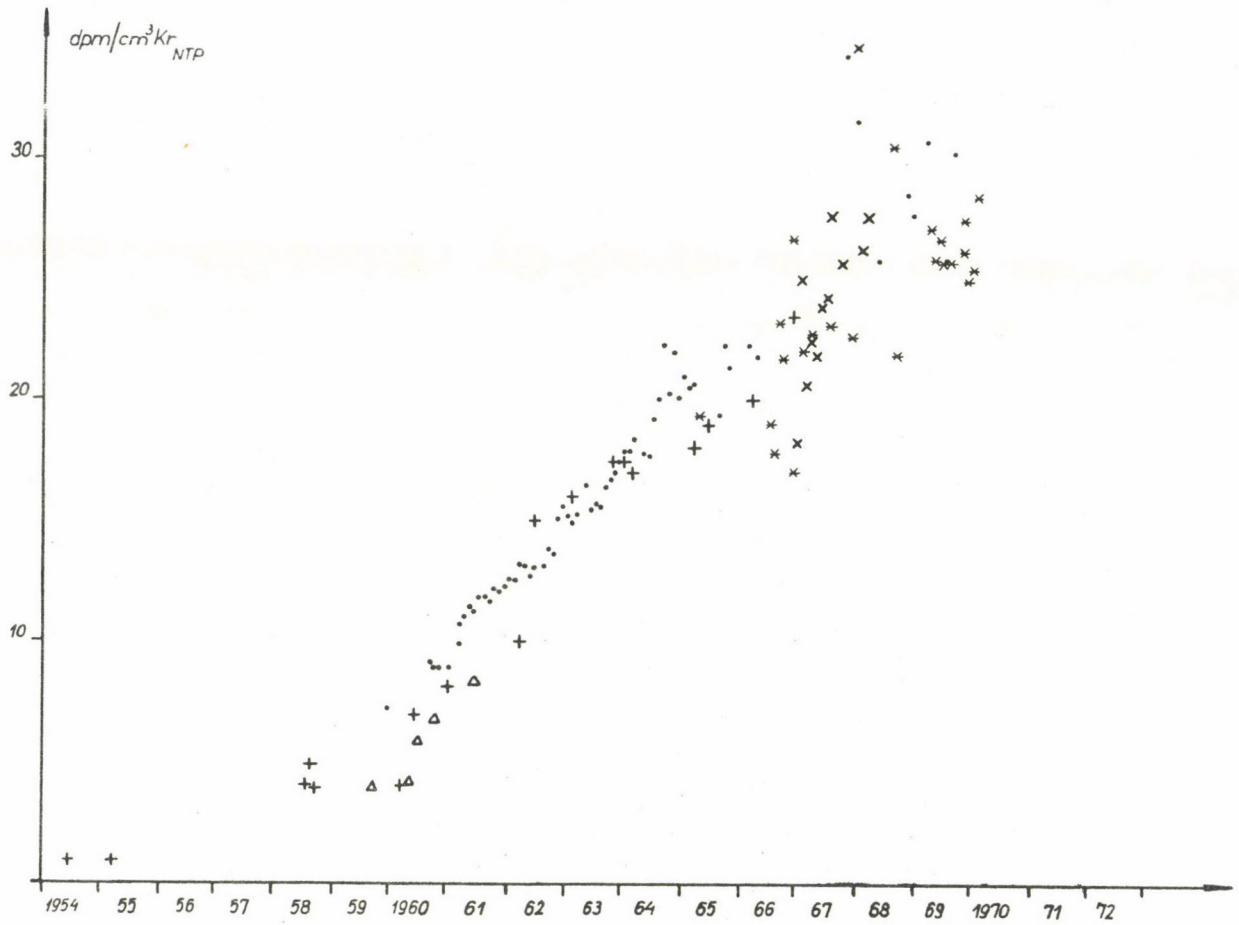
A légkör ^{85}Kr tartalmának megállapitására irányuló rendszeres mérések 1958 óta folynak. Az első méréseket 1954-ben de Vries és Delibrias végezték Franciaországban[2,3]. A későbbiekben 1958-tól Franciaországban[4,12], 1959-től Heidelbergben[5,7,8,14] /NSzK/, 1966-tól az Egyesült Államok két laboratóriumában[10,11,13], és szintén 1966-tól Debrecenben[15,16] folynak rendszeres vizsgálatok a légkör ^{85}Kr tartalmának megállapitására.

Az eddig közzétett adatokat összesitve az 1. ábra tartalmazza.

Az adatok legnagyobb részét belső gáztöltésü proporcionális számlálókkal kapták. A francia csoport 1,2 l térfogatu számlálót használ, a bevitt Kr gáz mennyiségét tömegspektrométerrel mérik. A Kr-hoz Ar+CH_4 vivő gázt adnak 740 torrig, és 36 GM csövet alkalmaznak védőszámlálóként.

A heidelbergi csoport 11 cm^3-es proporcionális számlálót használ. A töltőgáz 100-200 torr Kr, amelyhez Ar+CH_4-t adnak 700-720 torr össznyomásig. Védőszámlálóként üreges plasztik-szcintillátort alkalmaznak.

Az Egyesült Államokban a mérések szcintillációs számlálóval folynak. Közvetlenül a levegőből veszik a számláláshoz használt Kr mintát. Néhány m^3 levegőből, többszöri kifagyasztás és kémiai szorpciós és kiégető folyamatok



1. ábra

A légköri ^{85}Kr-aktivitás

\+ Franciaország; . NSzK; △ Japán; x és ✳ Egyesült Államok.

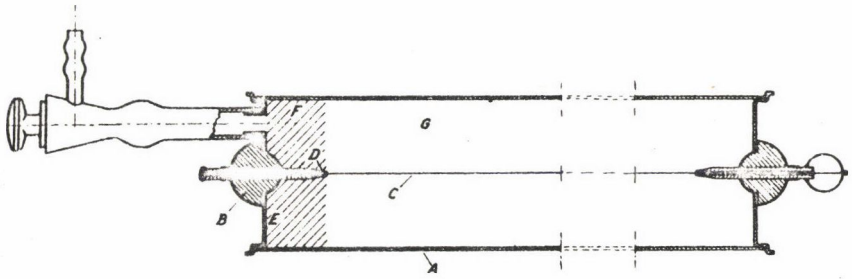
után néhány cm^3 Kr-hoz jutnak. Az aktivitást vagy ugy mérik, hogy néhány cm^3-es üvegampullába 20-40 mesh finomságu plasztik szcintillátor törmeléket helyeznek, és ebbe viszik be a mérendő gázt, vagy ugy, hogy kb. 25 cm^3 szcintillátorfolyadékban oldják a kb. 10 cm^3 Kr-t /a Kr oldhatósága aromás oldószerekben igen jó, 1 ml Kr/ml oldószer/.

A légköri ^{85}Kr-koncentráció mérésére az általam alkalmazott módszer a következő.

A Kr gáz mintákat az Egyesült Izzó miskolci kriptongyárából kapom, ahol a gáz előállitása a levegő $1{,}14.10^{-6}$ térfogatrésznyi Kr-tartalmának feldusitása révén, Linde-eljárással folyik. A gáz Kr-tartalma általában 98% körül van, tisztaságát tömegspektrométerrel ellenőrizzük. A gyártási eljárás

során a radon szintén feldusul a gázban /T = 3,8 nap/, ezért összes méréseinket a gáz radon tartalmának teljes lebomlása után, a mintavétel után 1 hónappal végezzük.

A Kr-gáz ^{85}Kr-tartalmát β-aktivitásának mérésével /$E_{\beta max}$ = 0,67 MeV/ határozzuk meg. A méréshez saját készitésü GM-számlálókat használunk, a csövek konstrukcióját a 2. ábra mutatja. Miután célunk a ^{85}Kr koncentrációjának mérése, meg kellett határoznunk a csövek effektiv térfogatát, ezért azonos /2,52 cm/ átmérővel és azonos végkonstrukcióval 3 különböző hosszuságu /27,4 és 17,4 cm szálhosszuságu/ GM-csövet készitettünk, és ezekkel az effektiv térfogatot kisérletileg határoztuk meg.



2. ábra

GM-cső metszetrajza

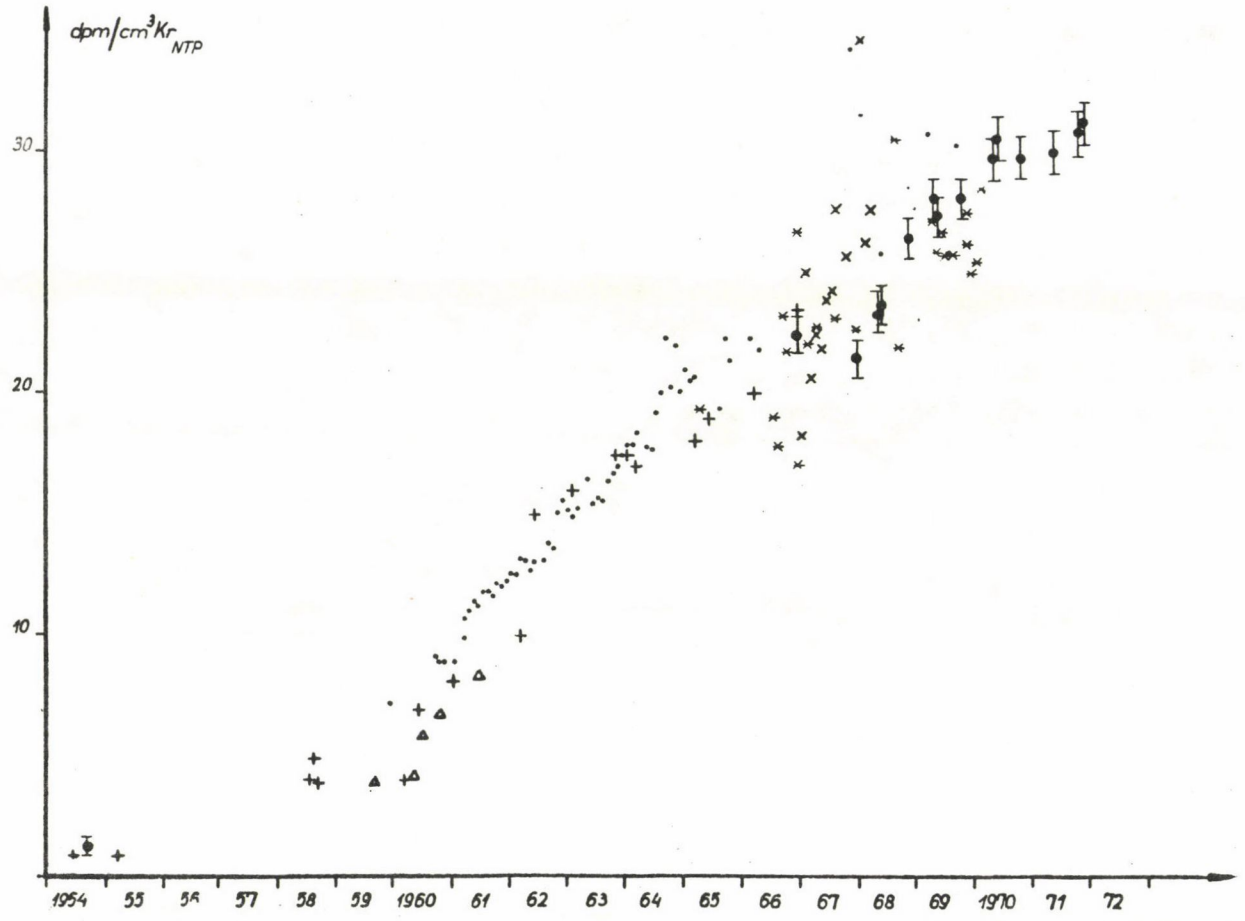
A - elektropolirozott vörösréz; B - beforrasztott üveggyöngy; C - 0,1 mm átmérőjü W szál; D - vörösréz kapilláris; E - vörösréz zárólap; F - érzéketlen végtérfogat; G - érzékeny térfogat

A csöveket 90 torr kripton és 10 torr izobután gázzal töltjük, a gyári kriptongázt további tisztitás nélkül használjuk a csövek töltésére. A GM-csövet 68 mm vastagságu ólommal árnyékoljuk. A háttérsugárzás csökkentésére nincs szükség külön védőszámlálóra, mert a 90 torr nyomásu töltés mellett is a percenkénti impulzusszám kb. tizszerese a háttér értékének.

A 3. ábra az előzőekben bemutatott összesitő ábrán tünteti fel az ATOMKI-ban végzett mérések adatait. Látható, hogy jó összhangban vannak a más laboratóriumokban kapott eredményekkel.

1966 óta rendszeresen, évenként két izben kérünk mintát a miskolci kriptongyártól. A mért aktivitásértékeket 1 cm^3 NTP Kr-gázra és a minta begyüjtésének időpontjára vonatkoztatjuk.

A mérési adatokból az atmoszférikus ^{85}Kr folyamatos növekedése állapitható meg. A mérés 5 éves tartama alatt mintegy 40%-kal nőtt az aktivitás.



3. ábra

A légkör ^{85}Kr-tartalmának növekedése. Az ábrán feltüntettük a Debrecenben 1966-71 között végzett mérések adatait / o /, összesitve az eddig közzétett külföldi adatokkal /1. ábra/

Aktivitásértékeink más koncentrációegységekre is átszámolhatók /1. táblázat/, illetve feltételezve, hogy a ^{85}Kr egyenletesen oszlik el a légkörben, kiszámolható a légkörben levő összes ^{85}Kr atom száma és a hozzá rendelhető összaktivitás /jelenleg 65,6 MCi/. A Kr egyenletes eloszlását jogosan feltételezhetjük, mivel a Kr nemesgáz, és felezési ideje viszonylag hosszu. Bár az adatokat az északi félteke különböző laboratóriumaiban, különböző mérési módszerekkel határozzák meg, a 3. ábrán közölt mérési adatok jó egyezése kisérleti bizonyitéknak tekinthető arra, hogy a kripton a légkörben egyenletesen oszlik el. Mérési adatok arra vonatkozóan is vannak[12], hogy a ^{85}Kr koncentrációja a magassággal 50 torr nyomásig alig változik.

A mérési adatokból tehát megállapitható a ^{85}Kr koncentrációjának folyamatos növekedése. A következő kérdés a ^{85}Kr eredetének tisztázása: mi okozza e környezetszennyezés növekedését.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

1. táblázat

A légköri ^{85}Kr tartalom növekedésére vonatkozó jellegzetes mérési adatok Debrecenben

Mérés ideje	dpm / cm^3 Kr	pCi / cm^3 Kr	pCi / m^3 levegő	^{85}Kr atomok száma a légkörben	^{85}Kr tartalom MCi
1966.dec.	22,4 ± 0,7	10,1	11,5	0,86 . 10^{27}	47,2
1968.okt.	26,4 ± 0,8	11,9	13,5	1,01 . 10^{27}	55,6
1971.nov.	31,2 ± 0,9	14,2	16,2	1,2 . 10^{27}	65,6
Évi növekedés			1		4

Már a bevezetőben szó volt arról, hogy a természetes háttérben jelentkező ^{85}Kr koncentrációja 5.10^{-6} pCi/m^3 levegő, azaz csaknem 7 nagyságrenddel kisebb a jelenlegi értéknél.

Ha az 1. görbe menetét összevetjük az atomfegyver-kisérletekből eredő fallout-radioaktivitás időbeli változásának görbéjével /4. ábra/, két szembetünő eltérést tapasztalunk /a fallout-aktivitás mérése is intézetünkben folyt, az ábrán a debreceni mérési eredmények vannak feltüntetve/:

a/ nincs korreláció az 1961-62-es atomfegyver-kisérletsorozattal;

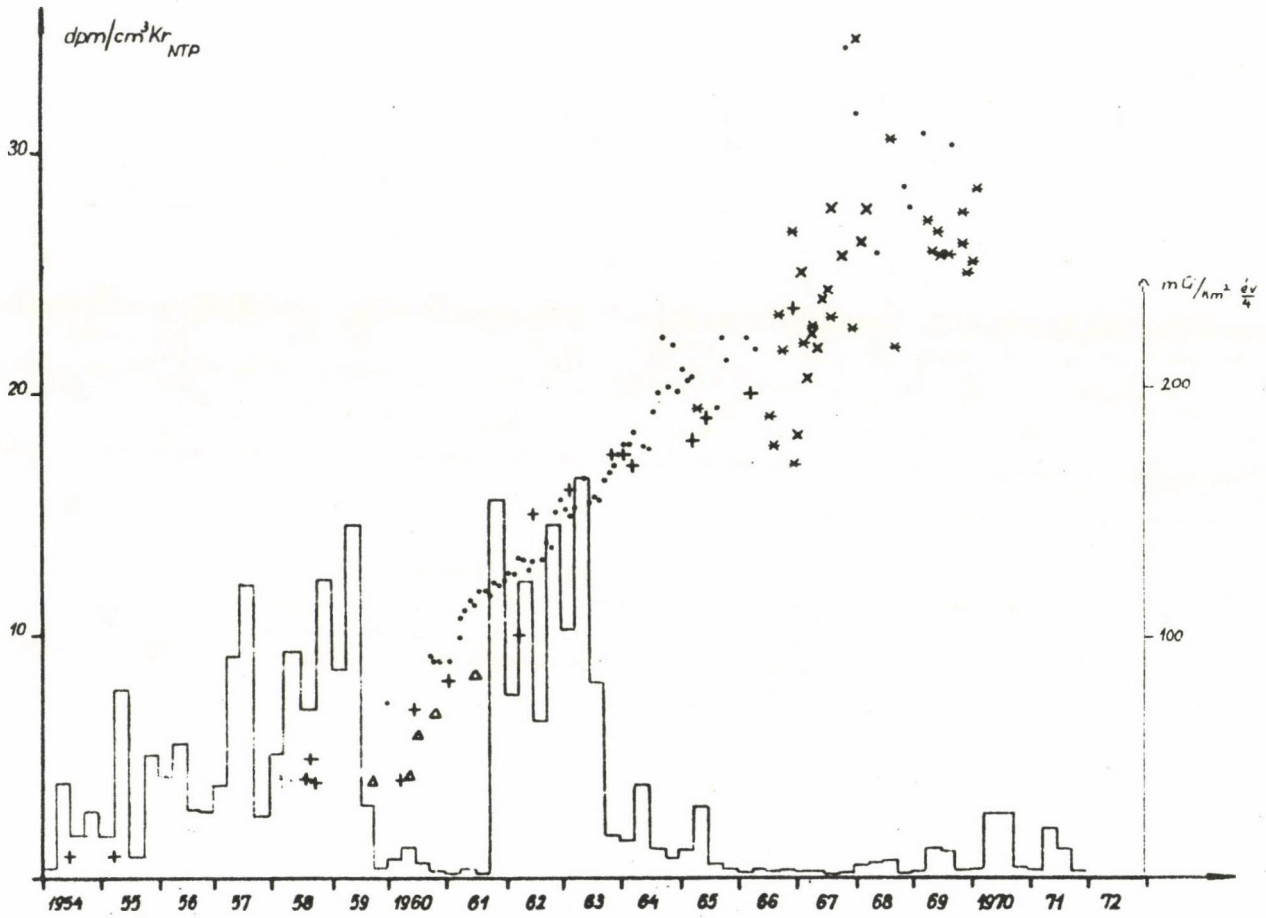
b/ a Kr-aktivitás mérésénél nem észlelhető a fallout-aktivitásra jellemző évszakos változás / a tavaszi csucs/.

Ezek a tények kvalitative bizonyitják, hogy nem az atomfegyver-kisérletek a légköri ^{85}Kr fő forrásai.

Kvantitativ bizonyitékot kaphatunk erre, ha kiszámitjuk, hogy az atomfegyver-kisérletekben felhasznált hasadóanyag hány ^{85}Kr atomot juttatott a légkörbe. Ismert, hogy a kisérletek során mintegy 200 Mt TNT-vel ekvivalens hasadó anyagot használtak fel, aminek kereken 70.10^{24} számu ^{85}Kr atom felel meg. Tehát a légköri ^{85}Kr koncentrációnak az atomfegyver-kisérletekből eredő része mintegy 1 pCi/m^3 levegő volt az 1960-as évek elején. Az 5. ábrán az alsó görbén láthatjuk az atomfegyver-kisérletekből eredő ^{85}Kr atomok számát, amely érték az utóbbi 10 évben, az 1961-62-es nagy kisérletsorozat óta gyakorlatilag feleződött. Az atomcsendegyezmény óta csak szórványosan voltak francia és kinai atomfegyver-kisérletek, s ezek nagyon csekély többletszennyezést eredményeztek.

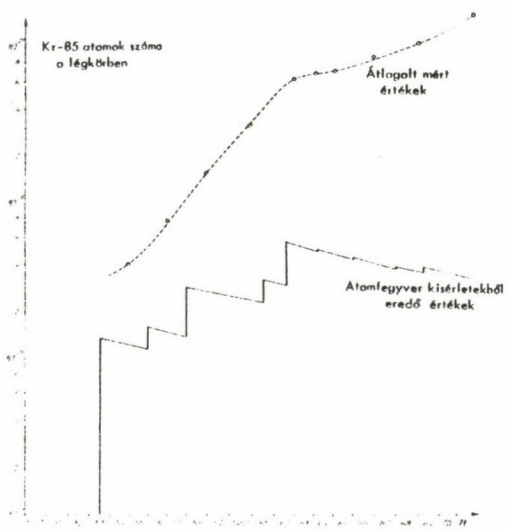
Az ábra felső görbéje a mérési pontokra illeszthető átlagos aktivitásértéket adja a légköri ^{85}Kr atomok számával kifejezve.

Az ábrából látható, hogy a légkör jelenlegi ^{85}Kr tartalma több mint harmincszorosa annak, mint ami az atomfegyver-kisérleteknek tulajdonitható.



4. ábra

A légköri ^{85}Kr-aktivitás növekedése, összehasonlitva az atomfegyver-kisérletekből eredő fallout-radioaktivitás időbeli változásával. Az ábra az ATOMKI-ban mért fallout-aktivitás értékeket negyedévenkénti összesitésben, mCi/km^2.negyedév egységben ábrázolja



5. ábra

Az alsó görbe: az atomfegyver-kisérletekből eredő ^{85}Kr atomok száma /számolva a 10,7 éves felezési idővel/; felső görbe: a 3. ábra mérési pontjaihoz illeszthető átlagos aktivitásértékek a légköri ^{85}Kr atomok számával kifejezve

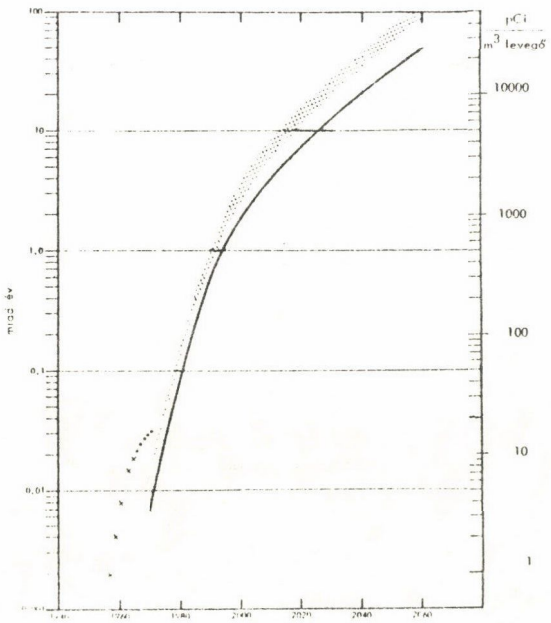
Ez az adat számszerü bizonyitékát adja annak, hogy a légkör ^{85}Kr tartalma csaknem kizárólag az *atomiparnak* tulajdonitható.

A ^{85}Kr a reaktorokban hasadási termékként keletkezik, hosszu felezési ideje miatt a reaktorrendszerben csak kevéssé bomlik. A reaktorok üzemeltetése során a légkörbe jutó ^{85}Kr mennyisége nem haladja meg évenként a 4.10^{3}Ci értéket, azaz 10^{-3} pCi/m^3 levegő az évenkénti átlagos koncentrációnövekedés az üzemeltetés miatt. Viszont mivel a Kr nemesgáz, elválasztása a reprocesszálás alatt nehéz, és a jelen technológia mellett költséges is. Ez az oka annak, hogy a fütőelem-reprocesszáló telepek jelenleg a ^{85}Kr-t kiengedik az atmoszférába, nem szokatlan, hogy egyes napokon 10^{3}-10^{4} Ci ^{85}Kr-t engednek ki a légkörbe, és az évi növekedés ennek következtében lesz kb. 1 pCi/m^3 levegő, azaz 4 MCi/év /1. táblázat/.

A ^{85}Kr kiengedésével kapcsolatban két megjegyzést lehet tenni:

1. Mivel ez a kiengedés a reprocesszáló üzemeknél nem folyamatos, ez a fő oka a mérési adatok szórásának, ami különösen az Egyesült Államokbeli, de ujabban a nyugat-németországi mérési adatoknál is jelentkezik.

2. A másik megjegyzésnek a gáz kiengedésével kapcsolatban környezetszennyezési, sugárvédelmi szempontból van érdekessége. A ^{85}Kr, mint nemesgáz, kölcsönhatás nélkül, az egész atmoszférában szétszóródik, és radioaktiv szennyeződést okoz nemcsak lokálisan, a fejlett atomiparral rendelkező földrészeken, hanem az egész földi légkörben. A ^{85}Kr jelenlegi koncentrációja mintegy 0,03 mrem/év felületi β-dózisterhelést jelent, igy ez jelenleg még nem jelent lényeges sugárterhelést a környezet 100-150 mrem/év dózisterheléséhez képest. A mérési adatok azonban a ^{85}Kr-szennyezés rohamos növekedésére vallanak. Számitásba véve az atomipar várható fejlődését, a hasadó anyagok növekvő felhasználását, ugy becslik[17], hogy 2060-ban a ^{85}Kr koncentrációja az atmoszférában mintegy 50 000 pCi/m^3 levegő lesz, ami 50-100 mrem/ év dózisterhelésnek felel meg /6. ábra/, tehát a ^{85}Kr-tól



6. ábra

Coleman és Liberace[17] a légköri ^{85}Kr-tartalom 1970-2060 évek közötti növekedésére és az ebből származó évi dózisterhelésre vonatkozó becslése. Az ábrán feltüntettük a nyugat-európai /x/ és a debreceni /./ mérési adatok átlagos értékét

eredő dózisterhelés a jelenlegi környezeti terhelést megkétszerezi.

Ebből az egyetlen adatból is látható, hogy mennyire kívánatos és szükséges olyan elválasztási eljárást kifejleszteni, amellyel a ^{85}Kr-t a reaktorfütőelem-feldolgozó üzemekben ki lehetne nyerni, és az atmoszféra szennyezése helyett hasznos célra lehetne felhasználni.

IRODALOM

1. *J. Lerner*, J. Inorg. Nucl. Chem. 25 /1963/ 794
2. *H. De Vries*, Appl. Sci. Research, B.5, 387, 1956.
3. *G. Delibrias, C. Jehanno*, Bull. Inf. Sci. Techn., No.30. June 1959.
4. *G. Delibrias, M. Perquis, I. Labeyrie*, Bull. Inf. Sci. Techn. No.54.,Sept. 1961.
5. *O. Griesser, A. Sittkus*, Z. Naturf., 16 /1961/ 620
6. *K. Kigoshi*, Bull. Chem. Soc. Japan, 35 /1962/ 1014
7. *D. Ehhalt, K.O. Münnich, W. Roether, J. Schölch, W. Stich*, J. Geophys. Res., 68 /1963/ 3817
8. *D. Ehhalt, K.O. Münnich, W. Roether, J. Schölch, W. Stich*, Third Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva, Vol. 14, 1965, 45
9. *T. Suzuki, K. Inoue*, J.Nucl. Sci. Techn., 9/1/ /1972/ 55
10. *N.I. Sax, J.D. Denny, R.R. Reeves*, Anal. Chem., 40 /1968/ 1915
11. *N.I. Sax, R.R. Reeves, J.D. Denny*, Rad. Health Data and Reports, 10 No.3 p.99., 1969
12. *R. Pannetier*, Rap. CEA-R-3591, France, 1968.
13. *R.E. Shuping, C.R. Philips, A.A. Moghissi*, Anal. Chem., 41 /1969/ 2082
14. *J. Schröder, K.O. Münnich, D.H. Ehhalt*, Nature, 233 /1971/ 614
15. *E. Csongor*, ATOMKI Közl., 10 /1968/ 1
16. *E. Csongor*, Acta Phys. Hung. 28 /1970/ 109
17. *J.R. Coleman, R. Liberace*, Rad. Health Data and Reports, 7 /1966/ 615

HIREK

IZOTÓPOK ELŐÁLLITÁSA

A rossendorfi Zentralinstitut für Kernphysik /NDK/ 1972. november közepére teljesitette 3,3 millió márka értékü izotópelőállitási tervét. A termelésnek majdnem 50%-át 12 országba exportálják.
Atomwirtschaft - Atomtechnik február.

A Japán Atomic Energy Research Institute ^{241}Am besugárzásával ^{244}Cm és ^{245}Cm izotópot állitottak elő. A képződött curiumban 13,8% 244 és 0,26% 245 tömegszámu izotóp található. Következő lépésként ^{252}Cf előállitását tervezik.
Atomwirtschaft - Atomtechnik február.

Az Egyesült Államokban Pd-Cf_2O_3 alakban állitanak elő ^{252}Cf-ot ipari célra, drót vagy gyöngy formában. 200 µg/cm tömegü drót ára cm-ként 240 dollár, a 20 vagy 2 µg/cm-es dróté pedig 100 dollár. A Pd-Cf_2O_3 tokolásának és előkészitésének ára 1250 dollár. A gyöngy 850 dollárba, a tokolatlan ^{252}Cf pedig µg-onként 10 dollárba kerül.
Atomwirtschaft - Atomtechnik február.

Az NSZK-ban a radioaktiv izotópok alkalmazóinak száma 1971-ben a gazdaságban kb. 20%-kal az orvostudomány és a kutatás területén kb. 10%-kal nőtt. Ez a szám 1964-65 óta a legnagyobb. A sugárvédelmileg ellenőrzendő személyek száma 13%-kal, ezen belül a filmdozimétereseké 17, az üvegdozimétereseké 46%-kal nőtt. Mintegy 9000 zárt készitmény ellenőrzése során 0,4%-nál állapitottak meg nem kellő zártságot.
Kerntechnik január, Atomwirtschaft-Atomtechnik február.

IZOTÓPOK ORVOSI FELHASZNÁLÁSA

Az Atomic Energy of Canada, Limited, amely 1958 óta több kobaltágyut szállitott a Kinai Népköztársaságnak, a legutóbbi pekingi vásáron 250 000 dollár értékü megrendelést kapott.

A pekingi Tudományos Akadémia mellett 2 AECL-kobaltágyu müködik 24 órás üzemben, amelyekkel naponta 500 beteget kezelnek. /Az amerikai kórházakban maximum 15 órás üzemben naponta 75 beteget kezelnek./
Atomwirtschaft - Atomtechnik, február.

A Stieglitz egyetemi klinika kardiológiai állomásán /Nyugat-Berlin/ nukleáris ritmuskeltőt /pacemakeot/ operáltak egy 58 éves asszony mellkasába. A berendezés feszültségforrásának élettartama legalább 10 év.
Kerntechnik, január.

IZOTÓPOK A MEZŐGAZDASÁGBAN

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 17 ország kutatóinak részvételével értekezletet tartott a sugárzásos sterilhimes rovarirtásról. A módszert jelenleg a San-Jaoquin-Tales /Kalifornia/ gyapotültetvényeit károsító cserebogár szaporodásának, valamint a földközi tengeri gyümölcslégy Északmexikóból Dél-Kaliforniába való átterjedésének meggátlására alkalmmazzák. Kanadában eredményt értek el az almamoly irtásban. 1973-ban a gyümölcslégggyel e módszerrel szállnak szembe Granada környékén /Spanyolország/ és Peru déli völgyeiben.
Atomwirtschaft - Atomtechnik, február.

SUGÁREGÉSZSÉGÜGY

Egy amerikai kutatócsoport javasolja, hogy a lakosságra jelenleg engedélyezett évi 170 mrem dózist, amely évi 5 mellkasátvilágitásnak felel meg, csökkentsék. Ellenkező esetben a rákos megbetegedésben elhunytak aránya évente kb. 2%-kal nő.
Kerntechnik, január.

Az Európai Gazdasági Közösség Bizottsága kutatást indit a munkaegészségügy és sugárvédelem területén mért orvosi és dozimetriai adatok automatikus feldolgozására. E feladattal a párizsi Laboratoire de Bio-Informatique du CNRS-t bizták meg. Programot dolgoznak ki a sugárvédelemben és a munkaegészségügyben szerzett információk kiértékelésére és gépi nyelvet szerkesztenek valamennyi statisztikus vizsgálat könnyü elvégzésére. Ezt az adatfeldolgozó rendszert kisérletképpen bevezetik az Ispra-i közös kutatóközpontban.
Kerntechnik, január.

RENDEZVÉNYEK

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 1972 junius 18-22 között nemzetközi szimpóziumot rendezett Stockholmban a nukleáris anyagok tengeri szállitásának jogi kérdéseiről. Az Atomic Energy Review 1972. 3. száma /szeptember/ részletesen beszámol a rendezvényről. Ugyanott olvashattuk a nukleáris aktivációs eljárások élettani alkalmazásával foglalkozó szimpóziumról is.

A FAO és a NAÜ 1972. november 13-17 között BOmbay-ben kongresszust rendezett Élelmiszerkonzerválás besugárzással cimmel.
Kerntechnik, 1972. november.

Az IRPA 3. Nemzetközi Kongresszusát 1973. szeptember 9-14 között tartja Washingtonban. Elsősorban a kis dózisok hatásával, orvosi besugárzással, a betegek sugárvédelmével, a nem ionizáló sugárzás biológiai hatásával, szabványaival és ellenőrzésével, valamint a környezet védelmével kapcsolatos

előadásokra számitanak. A sugárvédelmi szolgálattal, dozimetriával és általában sugárfizikával, emberi anyagcserével és a hozzá kapcsolódó sugárbiológiai kérdésekkel, nagy dózisok hatásával külön vitákon, szimpóziumokon kívánnak foglalkozni.
Health Physics 1973. január.

Márc.12-16	Symposium on Application of Nuclear Data in Science and Technology, IAEA, Paris,
Márc. 13-14	Information Meeting on the Development of Industrial Applications of Radiation Chemistry, ATEN, Paris
Márc. 23	Meeting on General Radiation Body Burden of Modern Man, Swiss Association for Atomic Energy, Bern
Márc. 26-30	Symposium on New Developments in Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds, IAEA, Koppenhága
Ápr.2-3	Symposium on the Determination of Radionuclids in Environmental and Biological Materials, Central ELectricity Generating Board, London
Ápr.2-7	Joint Meeting on Trace Analysis, Gesellschaft Deutscher Chemiker, Erlangen-Nürnberg
Ápr.9-12	2nd International Symposium on Cancer Detection and Prevention, International Union against Cancer, International Agency for Research on Cancer, WHO, Bologna
Ápr.11-13	10.Annual Meeting of the European Society of Paediatric Radiology, Birmingham
Ápr.12-13	1st Annual Meeting of the British Nuclear Medicine Society London
Ápr.13	Symposium on the Monitoring of ELectron Capture Nuclids and Soft Beta Emitters, Nottingham
Ápr.17-19	4th International Symposium on Cardiac Pacing, State University of Groningen, Groningen
Ápr. 24-28	7th Radiochemical Conference, Marianské Lázné

VEGYES HIREK

Az angol Institute of Geological Science és a harwelli Atomic Energy Research Establishment γ-spektrométert épitett a tengerfenék vizsgálatára.Egy nyomás- és vizálló tokolásu szcintillációs számláló 850 m hosszu speciális kábelen 6-10 km/óra sebességgel vontatható, átlag 200 m mélységben. A hajón levő spektrométerrész háromcsatornás spektrométerből, 100-csatornás analizátorból és egy további csatornából áll az összes beütésszám mérésére. Az eddigi mérések szerint a sziklás tengerfenék az üledéktől igen jól megkülönböztethető.
Kerntechnik, január.

A nyugat-berlini, esseni és kölni energiagazdasági intézet prognózisa az 1980-as energiafogyasztásról:

	1971	1980
Összfogyasztás, millió tonna szénekvivalens	339	513
ebből olaj, %	55	55
szén, %	27	11
földgáz, %	0	15
nukleáris energia, %	1	9
egyéb/viz, lignit stb./%	17	10
Az energiafogyasztás megoszlása, %		
háztartás,	44	46
közlekedés,	18	19
ipar	38	35

Nuclear Energy, február.

Az Egyesült Államok Atomenergia Bizottsága 1972. julius 1-én kezdődött uj pénzügyi évének költségvetése 15%-kal nagyobb az előző, 1971/72 évinél. A fontosabb tételek a következők /dollárban/:

	1971/72	1972/73
Nukleáris anyagok	498 112	526 630
Atomfegyverprogram	1 015 103	1 016 295
Reaktorfejlesztés	536 813	568 150
Magfizikai kutatás	356 248	373 850
Biológia és orvostudomány	96 175	104 155
Kiképzés, tájékoztatás	13 824	16 850
Izotóptermelés és -felhasználás	6 650	6 700
Békés atomrobbantás	7 100	7 500
Nukleáris energetikai berendezések engedélyezése és felügyelete	22 552	27 300
Adminisztráció	125 354	130 270

Isotopenpraxis 1972. október.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

309024

IV.

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 3. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 3. SZÁM

BUDAPEST 1973. MÁRCIUS

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Polgár Erzsébet

Országos Közegészségügyi Intézet, 1097 Budapest, Gyáli ut 2/6

Szokolyi László,Szörényi Árpád

Országos Mérésügyi Hivatal, 1124 Budapest, Németvölgyi ut 37/39

Barta Tamás, Jedlovszky Rezső

Országos Mérésügyi Hivatal, 1124 Budapest, Németvölgyi ut 37/39

Gyertyánfy Géza, Földes János, Kollin Éva

Semmelweis Orvostudományi Egyetem 1.sz. Belgyógyászati Klinikája
1083 Korányi S.u. 2/a

Benkő Lázár

MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.77

Felelős kiadó:Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Gyenes Imre
Engedélyszám: III6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-75-80

1973. 3. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlap-üzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál//KHI/, Budapest V., József nádor tér 1, Távbeszélő: 180-850. Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240,-Ft Egyes szám ára: 20,-Ft
Példányszám: 250

TARTALOM

A környezet radioaktivitása ellenőrzésének ujabb szempontjai, különös tekintettel az összes β- és γ-aktivitás mérési módszereire 113
Polgár E.

Новые аспекты контроля радиоактивности окружающей среды, с особым вниманием на измерительные методы суммарной β- и γ-активностей

Novel Aspects of the Control of Environmental Radioactivity, with Special Reference to Methods of Measurements of Integral β- and γ-Activities

Radioaktiv etalonok készitése az Országos Mérésügyi Hivatalban .. 123
Szokolyi L., Szörényi Á.

Изготовление радиоактивных эталонов в Государственном метрологическом бюро

The Preparation of Radioactive Standards in the National Metrological Bureau

A radioaktiv etalonok készitésének néhány kérdése 135
Barta T., Jedlovszky R., Szörényi Á.

Некоторые вопросы изготовления радиоактивных эталонов

Some Problems of the Preparation of Radioactive Standards

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok szétválasztása és százalékos eloszlásuk meghatározása 149
Gyertyánfy G., Földes J., Kollin É.

Разделение меченых йодтирозинов и йодтиронинов и определение их перцентного распределения

Separation of Jodothyrosines and Iodothyronines and the Determination of Their Percentage Distribution

A PMB-6 tipusu betatron sugárzásának mérése 159
Benkő L.

Измерение излучения бетатрона типа ПМБ-6

Measuring of the Radiation Field of a PMB-6 Type Betatron

HIREK 173

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 3. szám.

A KÖRNYEZET RADIOAKTIVITÁSA ELLENŐRZÉSÉNEK UJABB SZEMPONTJAI, KÜLÖNÖS TEKINTETTEL AZ ÖSSZES β- ÉS γ-AKTIVITÁS RUTIN MÉRÉSI MÓDSZEREIRE *

Polgár E.
Országos Közegészségügyi Intézet, Budapest

A KFKI környezetében vett talajminták összes β-aktivitása. A széntüzelésü erőművek által kibocsátott rádiumszennyezés, valamint a pernye aktivitásának mértéke

Новые аспекты контроля радиоактивности окружающей среды, с особым вниманием на измерительные методы суммарной β- и γ-активностей
Полгар, Э.

Суммарная β-активность проб почв в окружностях Центрального института физических исследований ВАН. Загрязнение от радия, выпущенном ТЭС, работающими на угле, и активность золи.

Novel Aspects of the Control of Environmental Radioactivity, with Special Reference to Methods of Measurement of Integral β- and γ-Activities
Polgár, E.

Integral β-activity of soil samples, collected in the environment of the Central Research Institute for Physics of the Hungarian Academy of Sciences. Radium contamination from coal-fired power stations and the activity of their ashes.

A környezet radioaktivitásának ellenőrzése mintegy 25 éves multra tekinthet vissza. Nem sokkal az atomkisérletek megkezdése után az USA, majd Anglia és a Szovjetunió is meginditotta a környezetellenőrzés munkáját. Kialakult az egész világra kiterjedő hálózat a fallout világméretü elterjedése mechanizmusának tisztázására, az egész lakosság sugárvédelme érdekében. A radioaktiv anyagok a környezetből csak nehezen, vagy egyáltalán nem távolithatók el, különleges fizikai tulajdonságaik és akkumulációs képességük miatt a környezet irreverzibilis elszennyeződésének forrásává válhatnak. A kis mennyiségben, de állandó jelleggel a környezetbe került sugárzó anyagok egészségügyi távhatása mindezideig tisztázatlan. Bár sok kisérletet tettek a környezetsugárzás és a daganatos betegségek közötti összefüggés kimutatására, a vizsgálatok megbizható kirtékelése mindezideig egyetlen szerzőnek sem sikerült. Számos bizonytalansági tényező között első helyen szerepel magának a háttérsugárzásnak a meghatározása. A nehézséget egyrészt

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai Szakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

az igen kis aktivitások mérése okozza, másrészt a természetes radioaktiv anyagok okozta sugárzás szétválasztása a mesterséges szennyeződésből származótól.

A bioszféra sugárszennyezettsége ellenőrzésének fő feladatát a legutóbbi évekig csaknem kizárólag a mesterséges radioaktivitás kimutatása képezte. A légkörben kivált és az ember életterét fenyegető mesterséges radioaktiv anyagok koncentrációjának ellenőrzésére sokféle vizsgálatot kell elvégezni. A rendkivül idő- és munkaigényes módszerek és a laboratóriumok korlátozott kapacitása miatt igen jelentős szerepe van annak, mely módszert választjuk ki. A mesterséges radioaktiv anyagok legnagyobb része β-sugárzó, ezért első tájékozódásra az összes β-aktivitást célszerü meghatározni. Ezek a mérések viszonylag gyorsan és egyszerüen kivitelezhetők, de semmit sem mondanak az aktivitást okozó izotópkeverék összetételéről, ezért nem használhatók a sugárterhelés becslésének alapjául, és rutin méréseknél is csak gyengén sugárzó minták esetén szolgáltatnak kielégitő eredményt. Az összes β-aktivitás rendszeres mérése jó tájékoztatást nyujt a szennyeződés mértékéről, de nem teszi nélkülözhetővé az egészségügyi szempontból jelentős nuklidok koncentrációjának ellenőrzését.

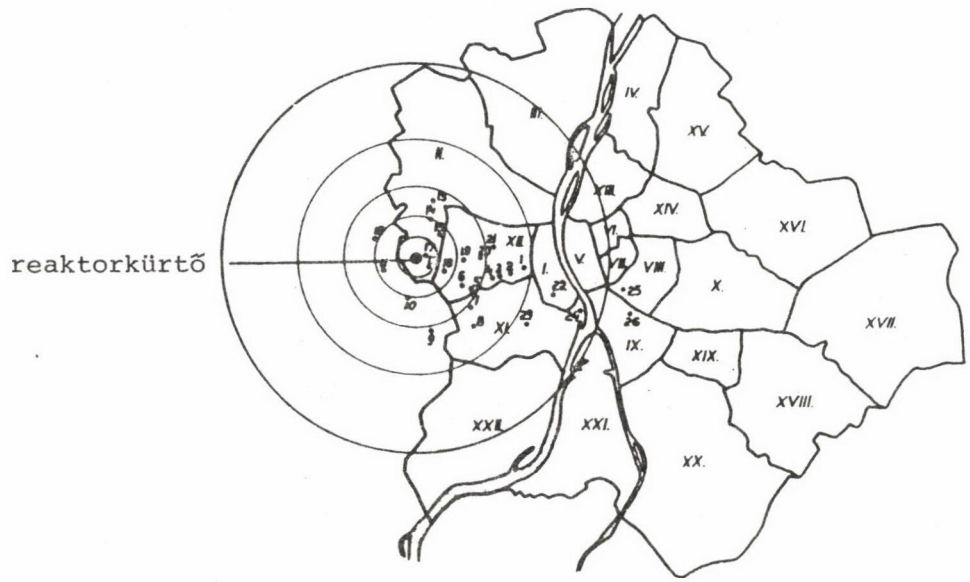
Ha az összes aktivitás az izotópkeverékre megadott határszintet tullépi, a szennyeződést okozó nuklidot meg kell határozni. Falloutnál a kritikus nuklid a ^{90}Sr és a ^{137}Cs, fiatal keverékekben pedig a ^{131}I.

Egészségügyi szempontból legnagyobb jelentősége a talajra és növényekre lerakódott radioaktiv anyagok koncentrációja meghatározásának van, mivel a fallout 98%-a a talajon és a növényeken kötődik meg. Ez közvetve a légköri csapadék és a fallout vizsgálata alapján történhet, mig a közvetlen talajvizsgálatok eredményei az ott felhalmozódott sugárzó anyagok légköri utánpótlástól és a radioaktiv lebomlás következtében előállt veszteségektől függő mennyiségeit tükrözik, tehát a szennyeződésről reálisabb képet adnak, mint a közvetett meghatározás, amely csak az aktuális helyzetet mutatja. Valamely reaktor vagy atomerőmü kéményéből kikerülő radioaktiv anyagokat a csapadék kimossa, s ezek a létesitmény környezetében a talajon lerakódnak. A talaj nagy adszorpciós készsége a sugárzó anyagok 90%-át a felső rétegben raktározza, igy a felső réteg a tartós környezeti elszennyeződés legmegbizhatóbb indikátora. Az alapszintsugárzás és a mindenkori fallout-aktivitás ismeretében, talajradiológiai vizsgálatokkal, bármikor tájékozódhatunk valamely atomtechnikai létesitmény környezetében az esetleges elszennyeződés mértékéről. Az alapszintsugárzás felmérésének elmulasztása esetén egy biztosan nem szennyezett helyről származó talajminta lehet az összehasonlitás alapja.

Talajminták α- és β-aktivitásának mérése, a sugárzás kis hatótávolsága és a talaj nagy abszorpciós képessége miatt, a szokásos készülékkel nem egyszerü feladat. A Bozóky Lászlóval kidolgozott eljárásunkkal[1] a talaj összes β-aktivitását néhány cm átmérőjü GM-csővel és a szokásos számlálókészülékkel

meg tudjuk mérni. Az abszolut aktivitás kiértékelésére házilag készitettünk ismert aktivitásu hordozómentes ^{90}Sr oldattal átitatott talajetalont. A talajpreparátum mérésére plexitálkák és tartók szolgálnak.

A KFKI környezetében vett talajminták összes β-aktivitását vizsgáljuk ezzel a módszerrel[2]. Koncentrikus körök által meghatározott sávokban, az uralkodó szél irányában sürübben kijelölt mintavételi helyekről, évente ugyanabban az időszakban /május/ vett minták összes β-aktivitását mérjük.



1. ábra

Talajmintavételi helyek

Közel 10 éves vizsgálati eredményeinket az alábbi táblázat tünteti fel.

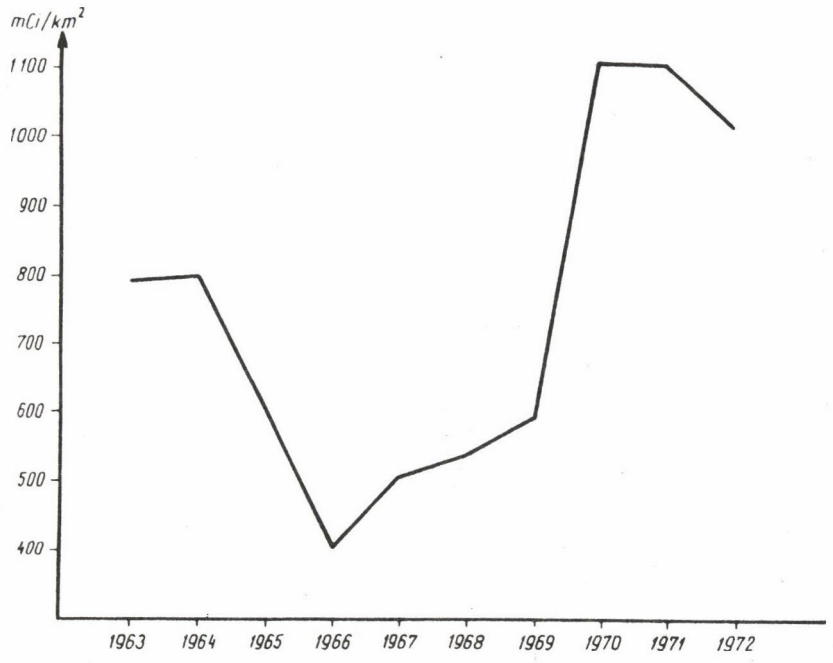
Az eredmények a fallout világméretü ingadozását tükrözik. A szemléletesség kedvéért az évi átlagos aktivitást grafikusan is ábrázoltuk, és összehasonlitás céljából, a fallout mérések alapján számitott, talajra került havi átlagos összes β-aktivitást és a ^{90}Sr mennyiségét is feltüntettük. A fallout összes β-aktivitását a szokásos módszerekkel, a ^{90}Sr tartalmat Kurczné Csiky Ildikóval együtt kidolgozott eljárásainkkal mértük[3-15].

Amint az ábrákból látható, a mesterséges aktivitás alakulása mind a három esetben hasonló tendenciát mutat: az atomcsendegyezményt követő években csökken, mig 1968-tól kezdődően növekszik a bioszféra mesterséges radioaktivitása. 1970-ben különösen kifejezett a növekedés, 1971-ben ismét kisebb a fallout okozta elszennyeződés.

1. táblázat

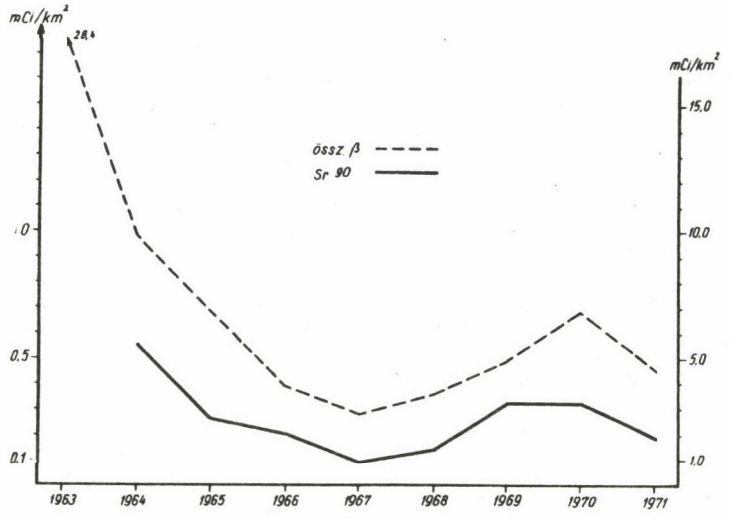
A térképen megjelölt mintavételi helyek talajának vizsgálati eredményei

A minta száma	helye	összes β-aktivitás mCi/km²									
		1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972
1.	Farkasréti temető alsó sarka	658	493	561	312	318	680	396	1076	962	481
2.	Rácz Aladár ut, második hajtükanyar után	621	510	680	427	250	510	165	1530	680	1166
3.	Edvi Illés ut, Ördögorom csárda előtti kertészet	765	952	612	527	471	284	1190	1530	690	906
4.	Edvi Illés ut, csárda után jobbra, pajta	930	-	510	277	850	624	452	962	622	850
5.	Nagyszebeni uti sarok	1275	850	340	690	437	680	-	1870	680	1132
6.	Irhás árok, 3-as elágazás	621	1071	901	253	510	420	1982	1904	1586	566
7.	Rupphegy	954	1122	680	491	680	456	1472	1496	1416	906
8.	Budaörs eleje, Farkasréti ut	1017	731	544	264	794	284	165	928	1642	1642
9.	Budaörs vége	697	680	510	264	566	736	476	826	935	1302
10.	Préskovácsgyár	621	952	799	286	566	736	306	419	1547	1302
11.	Préskovácsgyár utáni erdőszél	221	510	323	286	459	566	566	1088	1812	1348
12.	Budakeszi, Főtér	765	680	561	427	736	556	566	884	2040	821
13.	Jánoshegy	427	112	153	213	226	311	165	1275	1156	1382
14.	Siugrósánc	782	952	391	542	566	510	391	1506	1127	260
15.	Csillagvizsgáló	1163	680	1156	610	622	794	731	170	323	843
16.	MOVRO repülőtér, épület	874	1071	595	617	413	566	765	452	843	1620
17.	MOVRO repülőtér, külső	813	680	901	617	555	680	520	1581	1586	1217
18.	KFKI, déli sarok	527	850	629	638	437	566	520	595	901	629
19.	TV mögötti rét	1241	1071	561	789	561	566	595	1569	600	1824
20.	Melinda ut vége	1119	799	680	335	549	461	503	1530	697	549
21.	Gyöngyvirág ut és Diana ut sarok	473	1122	612	335	566	566	442	1071	1190	962
22.	Hegyalja ut 56 sz. előtt	-	-	-	335	284	267	476	792	1212	385
23.	Osztyapenko szobor	-	-	-	236	566	488	622	1360	510	1642
24.	Irinyi József ut 28.sz.előtti tér	-	-	-	197	396	594	486	996	1275	408
25.	Muzeum kert	-	-	-	292	396	594	226	515	1195	850
26.	OKI kert	-	-	-	349	386	442	350	935	1496	1387
Átlag:		789	794	605	404	506	536	581	1110	1105	1014



2. ábra

Budapesti talajminták átlagos összes β-aktivitásának alakulása



3. ábra

A talajra lehullott havi átlagos összes β- és ^{90}Sr-aktivitásának alakulása falloutmérések alapján

A rutinellenőrzés számára az összes β-aktivitás értékei kielégitő eredményt szolgáltatnak, a kontaminációt azonban csak a kritikus nuklid koncentrációjának ismeretében lehet megitélni[16].

Az ember járulékos sugárterhelését nem kizárólag mesterséges hasadási termékek biztositják. Eisenbud és munkatársai[17] kimutatták, hogy hagyományos széntüzelésü erőmüvek kéményén át viszonylag jelentősebb mennyiségü sugárzó anyag kerül a környezetbe, mint a hasonló nagyságu nukleáris erőmüvekből.

Egyes szénlelőhelyeken az átlagosnál nagyobb a sugárzó anyag koncentrációja. Ilyen szén felhasználása is okozhatja a természetes radioaktiv anyagok felhalmozódását a környezetben. Tekintve a rádium nagy toxicitását, a természetes sugárzó anyagok koncentrálódásának környezetegészségügyi távhatása nem elhanyagolható. Hazánkban az ajkai és inotai erőmü környezetében végzett komplex radiológiai vizsgálatok során, felhasznált szenek minősége szerinti ingadozó mennyiségben mutattunk ki a falloutban ^{226}Ra-ot, mig a budapesti falloutban nem tudtunk mérhető mennyiségben rádiumot kimutatni[18,19]. Több éves vizsgálataink eredménye szerint a fallout rádiumtartalma a pernyeminták rádiumtartalmának függvénye, mig összes β-aktivitása a Budapesten gyüjtött mintáéval kb. azonos szinten mozog. A környező vizfolyások sugárzóanyag-tartalma nem különbözött az ország más vidékein mérttől. A talajminta összes β-aktivitását viszont nagyobbnak találtuk, mint a budapesti talajminták aktivitását.

Az ajkai és inotai erőmü környezetében végzett komplex radiológiai vizsgálatok is azt mutatják, hogy a tartós környezeti elszennyeződés legmegbizhatóbb indikátora a talaj, amelynek felső 5-10 cm-es rétege a hosszuéletü termékek rezervoárjának tekinthető.

Természetes radioaktivitás esetén a meghatározandó kritikus nuklid legtöbb esetben a rádium. A rádium direkt meghatározása általában, a minta feltárása utján nyert oldatban, radiokémiai leválasztással, vagy fizikai módszerrel, a radioaktiv egyensuly beállta után termelődött ^{222}Rn mennyisége alapján történhet. Maga a feltárás és a radiokémiai analizis rendkivül idő- és munkaigényes, nagy szakértelmet és kellő gyakorlatot kivánó feladat. Az átlagos laboratóriumi kapacitás mellett csak korlátozott számu minta dolgozható fel. Ahhoz, hogy egy nagy kiterjedésü terület szennyezettségéről megbizható képet kapjunk, igen sok mintát kell feldolgozni, hogy a mintavételezés térbeli és időbeli gyakorisága a statisztikai biztonsághoz kielégitő legyen. A gazdasági szempontok is amellett szólnak, hogy először egyszerübben kivitelezhető módszerrel, viszonylag gyorsan jussunk olyan információk birtokába, amelyek alapján a szennyezettség vázlatos képe kialakitható, és kijelölhetők azok a pontok, amelyeken igényesebb módszereket indokolt alkalmazni.

Az urán-rádium- tórium természetes radioaktiv sorozat jelentősebb tagjai α-sugárzók. Kézenfekvő, hogy első tájékozódásra az összes α-aktivitást

határozzuk meg. A hosszu életü α-aktivitás zöme általában rádiumtól ered.

Sorozatmérésekre alkalmas egyszerü eljárás kidolgozásának több nehézsége van: a meghatározandó aktivitás kicsisége, az α-sugarak rendkivül kis hatótávolsága, a mérendő talaj-, pernye-, kőzet- stb. minták nagy abszorpciós készsége, és az abszolut aktivitás meghatározására alkalmas standard megválasztása.

A radiológiai mérést hamvasztás nélkül, a pernyemintáknál közvetlenül, talaj-, salak-, stb. mintáknál megfelelő fizikai előkészités után végezhetjük. A talajmintákat, a gyökerek és a növényzet eltávolitása után, tálcákra teritve először légszárazra, majd száritószekrényben 105 ^{o}C-on száritjuk. A száraz talajt összetörjük, dörzsmozsárban homogenizáljuk, majd 4-2-0,2 mm-es fonalközü szitán átszitáljuk. A mintába esetleg belekerült köveket eldobjuk.

Az α-aktivitást végtelen vastag rétegben mérjük. Az előkészitett talajt a detektor méreteinek megfelelő átmérőjü plexitálkába mérjük. A tálkába 1 mm mélyen benyuló dugattyu forgatásával biztositjuk a minta azonos mennyiségét, a felület egyenletességét és azt, hogy a tálka pereme alatt azonosan helyezkedjék el. A plexitálkát, a hozzátartozó tartóba elhelyezve, α-részecskék mérésére alkalmas szcintillációs számláló alá helyezzük. A méréseket Frieseke-Hoepfner gyártmányu szcintillációs számlálóval végeztük.

Az abszolut aktivitást ^{241}Am-mal jelzett talajetalon segitségével határoztuk meg. Az etalonokat, az általunk használt plexitálkák és mintatartók felhasználásával, az Országos Mérésügyi Hivatal készitette.

A vizsgálatok eredményét az alábbiakban közlöm.

A nagyobb urántartalmu szenet felhasználó ajkai és inotai erőmü környezetéből származó és néhány budapesti talajminta fajlagos α-aktivitását a 2. táblázat tünteti fel.

Az ajkai és inotai erőmü környezetében vett minták átlagos α-aktivitása kissé nagyobb, mint a budapestieké.

A módszer jól alkalmazható erőmüvi pernyék tájékoztató jellegü radiológiai vizsgálatára. Az erőmüvi pernyét, bányameddővel keverve /75 % pernye, 25 % bányameddő/, golyók formájában 1200-1400 ^{o}C-on kiégetve, betonkészitésnél kavicspótló anyagnak használhatják. Alkalmazhatósága azonban nagymértékben függ a pernye természetes sugárzóanyag-tartalmától. Az épitkezésnél felhasznált erőmüvi pernyében elenlevő urán-rádium természetes radioaktiv sorozat gázalaku bomlásterméke, a radon, anyaelemének, a rádiumnak a pernyében lévő mennyiségétől és az épitkezés technológiájától függően kerülhet az épületek légkörébe. A belélegzett radon, α-sugárzása miatt, jelentős járulékos sugárterhelést jelent. Ezért lakóépületek épitéséhez erőmüvi pernye csak előzetes radiológiai vizsgálat eredményétől függően alkalmazható.

A pernyék radonemissziója elsősorban a fajlagos rádiumkoncentráció függvénye. Ennek meghatározása idő- és munkaigényes, mig a fajlagos α-aktivitás

2. táblázat

Talajminták α-aktivitása

pCi/g

Edvi Illés ut, Ördögorom csárda előtti kertészet	23,8
Edvi Illés ut, csárda után jobbra, pajta	6,0
Irhás árok, hármas elágazás	38,3
Préskovácsgyár utáni erdőszél	10,9
Csillagvizsgáló	49,3
KFKI, déli sarok	82,2
Osztyapenko szobor	44,8
OKI kert	24,0
Csór-Nádasladány vasutállomás	35,0
Inota, Nádasladány felé vezető uton 4-es km-kő	16,0
Inota, Réti tanyai kut	80,0
Várpalota, vasutállomás	79,8
Várpalota, Ősi felé vezető uton, horgásztó	75,0
Ajka, Bartók B. ut 14, felső szint	39,1
Ajka, Bartók B. ut 14, alsó szint	19,3
Ajka, Bódéi óvoda kertje	70,6

3. táblázat

Pernye, salak, kavicspótló minták α-aktivitása

pCi/g

Ajkai pernye	1.	229,6
	2.	234,2
	3.	252,4
Tatabányai pernye	1.	175,0
	2.	144,3
	3.	157,4
	4.	209,6
	5.	207,6
Inotai pernye	1.	81,1
	2.	75,1
	3.	58,3
Inotai salak	1.	53,3
	2.	67,2
	3.	56,5
Tatabányai vegyes palahányó	1.	26,8
	2.	23,0
Tatabányai kavicspótló	1.	86,0
	2.	75,7
Mátravidéki kavicspótló		33,1

meghatározása egyszerü eszközökkel nyujt gyors információt a pernyék épitőanyagként történő felhasználhatóságáról. A 3. táblázat néhány erőmüvi pernye, valamint épitkezési célra felhasználni kivánt pernyekavics fajlagos α-aktivitását tartalmazza.

Nagyobb α-aktivitást mutatnak az ajkai és tatabányai pernyeminták. Lényegesen kisebb α-sugárzása van a tatabányai palahányó mintáinak. Közbeeső értéken mozog a kavicspótló minták α-aktivitása. Eszerint az erőmüvi pernye, a meddőhányó anyagával keverten kaviccsá feldolgozva, veszit aktivitásából. Legkisebb aktivitása a mátrai pernyekavicsnak van. Néhány kőzetminta fenti módszerrel meghatározott α-aktivitását a 4. táblázatba adom meg.

4. táblázat

Kőzetminták α-aktivitása

pCi/g

Aragonit	2,1
Limonit	3,9
Dolomit	25,9
Kalcit	26,6
Agyagos márga	27,0
Haematit 1.	32,0
2.	31,0
Szaruköves breccia	30,4
Eocén szaruköves breccia	39,0
Gránit /Velence/	108,7

A gránit nagyobb sugárzóanyag-tartalmát jól tükrözi viszonylag nagy α-aktivitása.

IRODALOM

1. *Bakácsné Polgár E., Bozóky L.*, Egészségtudomány 9 /1965/ 408
2. *Polgár E., Bozóky L.*, Egészségtudomány 12 /1968/ 80
3. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, Ж.анал.хим., 10 /1963/ 1206
4. *Bakácsné Polgár E., Kurczné Csiky I.*, Atomtech. Táj., 11 /1963/ 849; OKI Évkönyv, /1962/
5. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, Nature 204 /1964/ 1057
6. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, Ж.анал.хим. 5 /1966/ 558
7. *Bakácsné Polgár E.*, OKI Évkönyv, /1965/
8. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, "Fizikai kémiai módszerek alkalmazása az analitikai kémiában" konf., Budapest 1966

9. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, 2nd Symp. Health Physics Pécs 1966
10. *Bakács-Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, Atompraxis, 13 /1967/ 301
11. *Polgár E., Kurczné Csiky I.*, M. Kém. L. /1968/
12. *Polgár E.*, Egészségtudomány 12 /1968/ 190
13. *Polgár E.*, Egészségtudomány 12 /1968/ 399
14. *Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, 2nd Congr. IRPA, Brighton, 1970
Health Physics 19 /1970/ 119
15. *Polgár E., Kurczné Csiky I.*, Egészségtudomány 15 /1971/ 383
16. *Polgár E.*, Egészségtudomány 15 /1971/ 278
17. *Eisenbud M., Petrow H.G.*, Science 144 /1964/ 288
18. *Polgár E., Kurczné Csiky I.*, Egészségtudomány 14 /1970/ 188
19. *Polgár E., Kurcz-Csiky I.*, Aktuelle Strahlenschutzprobleme, Österreichischer Verband für Strahlenschutz, 1970

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 3. szám.

RADIOAKTIV ETALONOK KÉSZITÉSE AZ ORSZÁGOS MÉRÉSÜGYI HIVATALBAN *

Szokolyi L., Szörényi Á.
Országos Mérésügyi Hivatal, Budapest

Radiokémiai problémák és eljárások. Aktivitásmérő módszerek és berendezések. A mérési eredmények kiértékelése.

Изготовление радиоактивных эталонов в Государственном метрологическом бюро Сокольи, Л., Сёрени, А.

Радиохимические проблемы и процессы. Методы и приборы измерения активности. Оценка результатов измерений.

The Preparation of Radioactive Standards in the National Metrological Bureau Szokolyi, L., Szörényi, Á.

Radiochemical problems and techniques. Activity measurement methods and instruments. Data evaluation.

Az Országos Mérésügyi Hivatal /a továbbiakban OMH/ közel 5 éve kezdte meg radioaktiv etalon sugárforrások készitését és az MTA Izotóp Intézetén keresztül forgalombahozatalukat. Erre természetesen csak hosszu előkészitő munka után kerülhetett sor. Az 1963-ban kezdődött előkészületekhez sorolhatjuk különféle aktivitásmérő berendezések tervezését és megépitését, a radiokémiai munkákra alkalmas "B" szintü izotóp laboratórium épitését és felszerelését. A végzett munka eredményességének ellenőrzésére jó alkalom kinálkozott 1967-ben, amikor nemzetközi összehasonlitó mérésben vettünk részt. Ebben az OMH a nemzetközi szinvonalnak megfelelő eredményt ért el[1].

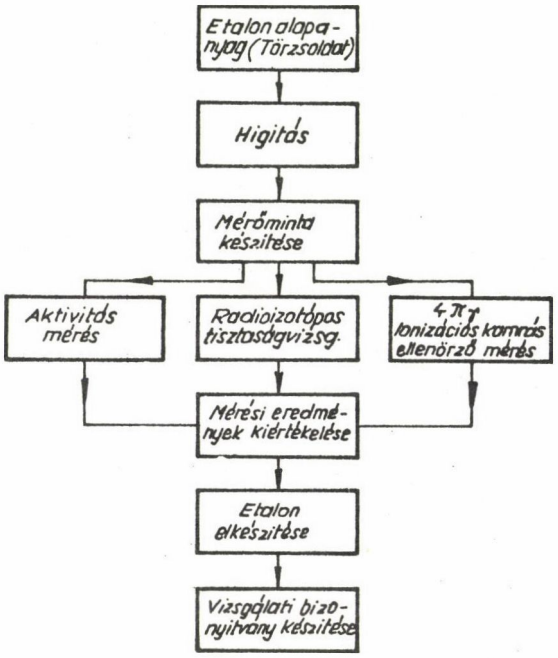
Az elmult 5 évben közel 500 radioaktiv etalont készitettünk, évenként 80 - 100-at, 1972-ben több, mint 140-et. A kibocsátott teljes mennyiség 34 izotóp között oszlik meg, igen eltérő darabszámmal. Egyesekből csak egy-egy etalon, a $^{90}Sr/+^{90}Y/$, ^{125}I, ^{131}Cs és ^{241}Am izotópokból pedig egyenként több mint 30 darab készült. Ennek 60 %-a folyadék, a többi szilárd etalon volt, melyeket 30 intézmény részére szállitottuk.

---

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai Szakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4. között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

Ha a fentieken kivül azt is figyelembe vesszük, hogy az etalonokat, a megrendelők kivánsága szerint, rendszerint különböző időpontokban kell elkészitenünk és szállitanunk, akkor érthető, hogy a tételek nagy része egyedi eljárással készül.

A radioaktiv etalonok készitésének menetét az 1. ábra mutatja.



1. ábra

Jelen közleményben a radioaktiv etalonok előállitásával kapcsolatos témák közül a radiokémiai problémákkal és eljárásokkal, az alkalmazott aktivitásmérő módszerekkel és berendezésekkel, valamint a mérési eredmények kiértékelésével foglalkozunk, mig a radioizotópos tisztaságvizsgálatot, a mérési eredmények pontosságának megadási módját és a nemzetközi összehasonlitó mérések jelentőségét másutt tárgyaljuk[2].

A RADIOAKTIV ETALONOK ALAPANYAGAI

Az etalonkészitès első fázisában kell kiválasztanunk a megfelelő anyagot. Erre két lehetőségünk van: vagy a termelők által kinált radioaktiv oldatok közül választunk, vagy saját anyagot sugároztatunk be. Az utóbbit akkor választjuk, ha az alapanyag fizikai formájával vagy tisztaságával szemben különleges követelményeket támasztunk[3]. Gyakorlatunkban általában szervetlen vegyületek alakjában lévő izotópok savas oldatát használjuk fel.

Az alapanyagul szolgáló oldat /törzsoldat/ legfontosabb jellemzői: radioaktiv koncentrációja, összaktivitása, radioizotópos tisztasága és kémiai összetétele: szilárdanyag-tartalma és savkoncentrációja.

Lehetőség szerint nagy radioaktiv koncentrációju törzsoldatot választunk. Ennek higitásával állitjuk elő a megfelelő radioaktiv koncentrációju oldatokat a radioizotópos tisztaságméréshez, a mérőminták és a radioaktiv etalon készitéséhez. A higitáshoz olyan higitószert /hordozót/ alkalmazunk, amely ugyanazt az inaktiv vegyületet tartalmazza olyan savas oldatban, mint amilyenben a radioaktiv izotóp van. Mivel a higitás esetenként 100-szoros is lehet, ezért a higitószernek az oldat tulajdonságait meghatározó szerepe van, készitésére és tárolására nagy gondot forditunk. A szokásos szilárdanyag-tartalom 25 µg hordozó 1 g oldatban. A megfelelő savkoncentráció egy-egy kivételtől eltekintve 0,1 - 1 normál sósav vagy salétromsav. A hordozó oldata, egyes baktériumok elszaporodásának megelőzésére, 0,1 % formalint is tartalmaz. Esetleges mechanikai szennyezések eltávolitására az oldatot G5-ös szürőn szürjük és felhasználásig polietilén palackban tároljuk.

A szilárdanyag-tartalom és savkoncentráció beállitásának több célja van. A kis hordozókoncentráció azt biztositja, hogy az oldatból kis önabszorpcióju mérőminták és sugárforrások legyenek készithetők, valamint az oldat homogén legyen. A hordozó elengedhetetlenül szükséges ahhoz, hogy az oldatok radioaktiv koncentrációja csak a radioaktiv bomlás törvénye szerint változzon, külső tényezők csak kevéssé befolyásolják /pl. ioncsere/. Ez különösen hosszu idejü tárolás esetén fontos.

RADIOAKTIV OLDATOK MENNYISÉGI HIGITÁSA ÉS ADAGOLÁSA, MÉRŐMINTA ÉS SUGÁRFORRÁS KÉSZITÉSÉNEK MÓDSZEREI

A radioaktiv etalon készitése az izotóp ismert radioaktiv koncentrációju oldatának előállitásával kezdődik.

Kivánatos, hogy a higitás - adagolás pontossága elérje vagy meghaladja az aktivitásmérés pontosságát. Ennek érdekében az oldatok mennyiségi higitását és adagolását polietilén piknométerben a tömegkülönbség-mérés módszerével, mikromérleg segitségével végezzük. Higitásnál a mért tömegü /A/ poli-

etilén piknométerbe szivjuk be a kivánt mennyiségü radioaktiv törzsoldatot. A piknométer és a törzsoldat együttes tömegének /B/ mérése után a kellő mennyiségü higitószert szivjuk a törzsoldathoz. Mérjük az együttes tömeget /C/. Mérési adatainkból a higitási tényező értékét /D/ igy kapjuk:

$$D = \frac{C - A}{B - A}$$

A megfelelő higitás után ugyanabból az edényből adagoljuk, "cseppentjük" a mérőminta készitéséhez szükséges oldatrészleteket a mintatartókra.

A tömegkülönbség-mérés módszere azt jelenti, hogy a piknométerből kicseppentett oldatrészlet tömegét /m_i/ ugy határozzuk meg, hogy a piknométer és a benne lévő oldat együttes tömegét mérjük cseppentés előtt és után /m_{ie} és m_{iu}/:

a csepp tömege: $m_i = m_{ie} - m_{iu}$

Az általunk használt mikromérleg Mettler gyártmányu, M5SA tipusu, helyettesitéses elven müködő, kétélü, egyenlőtlen karu mérleg, amelynek érzékenysége a terheléstől a méréshatáron belül /20 g/ független.

A mérleg érzékenységét hitelesitett 10 mg-os sullyal ellenőrizzük és korrekcióba vesszük. A tömegmérési eredmények kiértékelésekor felhajtóerőkorrekciót is alkalmazunk. Igy a higitás müveletének bizonytalansága $\pm$ 0,05 %-ra, a cseppentésé pedig, 30 mg-os csepptömeg esetén, $\pm$ 0,07 %-ra csökkenthető.

A mérőminták mintatartója leggyakrabban aluminium körgyürün lévő, 8 - 15 $\mu g/cm^2$ felületi sürüségü, VYNS-3 /polivinilklorid-polivinilacetát kopolimer/ fólia, melynek elektromos vezetőképességét 15 - 20 $\mu g/cm^2$ felületi sürüségü, vákuumgőzöléssel felvitt aranyréteggel biztositjuk /a sztatikus töltés levezetésére/.

A mintatartóra cseppentett radioaktiv oldathoz mikrokristályosodást elősegitő kolloid sziliciumdioxid /Ludox SM/ és felületaktiv anyag /Teepol/ oldatát adjuk. Ettől eltérő kezelést alkalmazunk - rendszerint csapadékképző reakciót - szublimálásra, kémiai bomlásra hajlamos vagy higroszkópos anyagoknál /Hg, I, stb./. Az oldószer elpárologtatása után egyenletes eloszlásu, kis szilárdanyag-tartalmu, jó hatásfoku mérőmintákat kapunk.

A törzsoldat vagy valamely közbenső higitási csoport radioaktiv koncentrációját /a_t/ a következő összefüggéssel határozzuk meg:

$$a_t = D_t \cdot \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \frac{A_i}{m_i}$$

ahol D_t a higitási tényező,

A_i a mérőminta aktivitása /s^{-1}/ és

m_i a mérőminta készitéséhez felhasznált radioaktiv oldat tömege /mg/.

A mérőminták önabszorpcióját többek között a szilárdanyag-tartalom és az oldat bepárlásakor keletkező kristályok mérete határozza meg.

Noha nem mennyiségi módszerek, mégis itt emlitjük meg a mérőminta készitésére alkalmas elektroporlasztásos[4] és a "molecular plating"[5] eljárást. Mindkettőnek az az előnye, hogy az általuk készitett, igen kis önabszorpcióju minták segitségével az aktivitásmérés pontossága növelhető.

Az elektroporlasztásos módszerrel igen nagy fajlagos aktivitásu, lehetőleg hordozómentes izotóp alkoholos oldatának igen kis részletét porlasztással visszük a mintatartóra 6 - 10 ezer volt egyenfeszültség segitségével. A sugárforrás átmérője elektromos fokuszálással szabályozható. Az igy készitett un. "sulytalan" mérőminták tömege 0,01 - 0,1 µg, szemben a cseppentett minták néhány mikrogrammos tömegével, számlálási hatásfokuk /ε_β/ ennek megfelelően a cseppentetteknél jelentősen nagyobb /pl. a ^{134}Cs-nél az $\varepsilon_\beta \simeq 84$ % helyett $\simeq 93$ %/.

A "molecular plating" eljárásnak az a lényege, hogy 500 - 600 V egyenfeszültség hatására a radioaktiv izotóp a szerves oldószeres közegből a katódnak kapcsolt fémfelületre válik ki, igy jó hatásfoku, félvezető spektrometriai célra is alkalmas sugárforrást kapunk. A folyamat mechanizmusa nem tisztázott, nem ionok, hanem molekulatöredékek válnak ki az oldatból, és a fémkatódon jól tapadó, bár vizben oldódó réteget alkotnak.

Az aktivitásmérés és a radioizotópos tisztaságvizsgálat eredményei birtokában készithető el a kivánt aktivitásu /radioaktiv koncentrációju és tömegü/ folyadék etalon, közvetlenül valamelyik rendelkezésre álló oldat üvegampullába történő bemérésével vagy külön higitás után.

A kész folyadék etalonokat veszteség nélkül ugy tárolhatjuk, hogy felhasználás előtt az ampullák belső felületébe szilikonolajat égetünk be, ami az üveg felületén történő ionadszorpciót és az oldat és az üveg közötti ioncserét csökkenti, majd az ampullák kiöntőnyilását lángban megolvasztva légmentesen zárjuk.

Szilárd etalon esetében mintatartóra adagoljuk a kivánt mennyiségü oldatot. A tartó, a felhasználás céljától függően, sokféle lehet. Ezért csak a félvezető és szcintillációs γ-spektrometriai célra készitett etalonsorozat néhány megvalósitási formájáról számolunk be.

Az etalonsorozat a következő izotópokból áll: ^{241}Am, ^{57}Co, ^{54}Mn, ^{22}Na, ^{137}Cs, ^{60}Co, ^{203}Hg és ^{88}Y.

Az e célra készült etalonok zárt sugárforrások, szokásos aktivitásuk

10 μCi /^{203}Hg-nál 25 μCi/. Viszonylag pontszerü sugárforrás készitéséhez nagy radioaktiv koncentrációju törzsoldat szükséges /∼1 μCi/mg oldat/. A radioaktiv oldat megfelelő részletét 0,25 mm vastag, 35 mm átmérőjü polisztirol tárcsa középpontjára cseppentjük. Beszáritás után a sugárforrást egy másik, a minta azonositási jelével ellátott, azonos méretü polisztirol tárcsával fedjük. A két müanyag tárcsát kétrészes aluminium szerszámba helyezve, megfelelő hőmérsékleten, melegen összesajtoljuk. Igy sik alaku, 0,50 ± 0,02 mm összvastagságu sugárforrásokat kapunk, amelyekben középen helyezkedik el a radioaktiv anyag. A müanyagtárcsát aluminium védőgyürüvel látjuk el.

1973-ban hozzuk forgalomba a fenti sorozat egy másik változatát. A polisztirol tárcsát 20 mm átmérőjüre készitjük, és két oldalról, hidegsajtolással, egyenként 0,5 mm vastag aluminium védőtokozással látjuk el. Ez a megoldás a sugárforrások tartós és nagyobb mechanikai szilárdságát hivatott biztositani.

Elkészitettük az etalonsorozatnak csőpostában továbbitható változatát is; a radioaktiv anyag zárt polietilén hengerben helyezkedik el.

AKTIVITÁSMÉRÉSI MÓDSZEREK ÉS BERENDEZÉSEK

Miután elkészültek a mérőberendezés sajátosságait /pl. a megengedhető maximális beütésszámot/ is figyelembevevő mérőminták, következik aktivitásuk meghatározása.

Adott mennyiségü radioaktiv izotóp aktivitása az időegység alatt az adott mennyiségben végbemenő magátalakulások száma[6]:

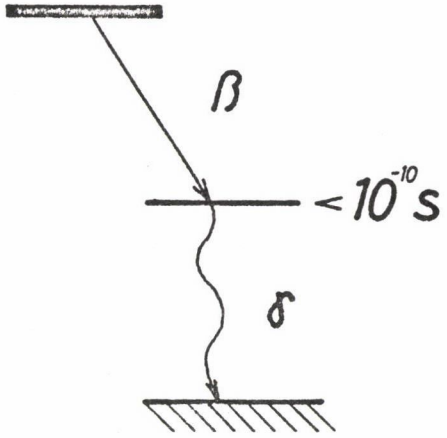
$$A = \frac{dN}{dt} ,$$

ahol

dN a spontán magátalakulások száma dt idő alatt.

Ha a gyakorlatban használatos kb. 70-féle radioaktiv etalont az aktivitás meghatározásához használható abszolut mérési módszerek szempontjából vizsgáljuk meg, azt az eredményt kapjuk, hogy közel 40 %-uk α - γ vagy β - γ-koincidenciamódszerrel mérhető a legpontosabban. Közel 30 % 4πβ vagy 4πα módszerrel, mig a maradék másik 30 %-a 4πX, X-γ, összegkoincidencia stb. módszer között oszlik meg. Ezért elsőként mi is az α/β/ - γ-koincidenciamódszert vizsgáljuk meg részletesebben, mellyel többek között a ^{46}Sc, ^{59}Fe, ^{60}Co, ^{82}Br, ^{131}I, ^{198}Au, ^{203}Hg stb. izotóp aktivitását mérik.

A 2. ábrán a β-γ-koincidencia bomlási séma lehetséges legegyszerübb esetét láthatjuk. Ebben az esetben olyan mérőberendezésre van szükségünk, melynek egyik detektora szelektiven méri a β-részecskék, a másik a γ-fotonok számát /N_β ill. N_γ/, és egyidejüleg mérjük az adott mérési idő alatt bekövetkező koincidenciaesemények számát /N_c/. E mennyiségeket az alábbi összefüggések határozzák meg:



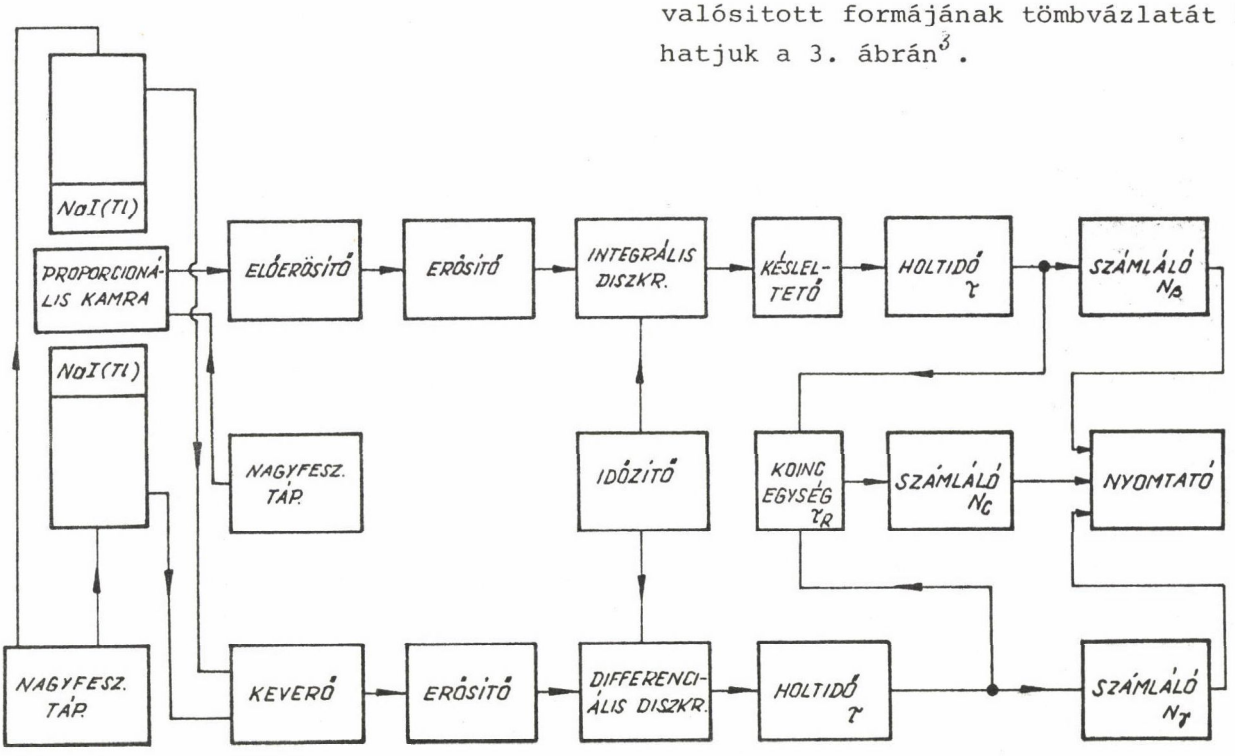
2. ábra

$$N_\beta = \varepsilon_\beta A_o$$
$$N_\gamma = \varepsilon_\gamma A_o$$
$$N_c = \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma A_o$$

igy $$A_o = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \qquad /1/$$

ahol A_o a mérőminta aktivitása, ill. ε_γ a β- ill. a γ-detektor hatásfoka. A valóságban az /1/ összefüggés, mint később látni fogjuk, a szükséges korrekciók miatt sokkal bonyolultabb.

Az ilyen bomlási tipusu izotópok aktivitásának mérésére szolgáló berendezés egyik lehetséges, az OMH-ban megvalósitott formájának tömbvázlatát láthatjuk a 3. ábrán[3].

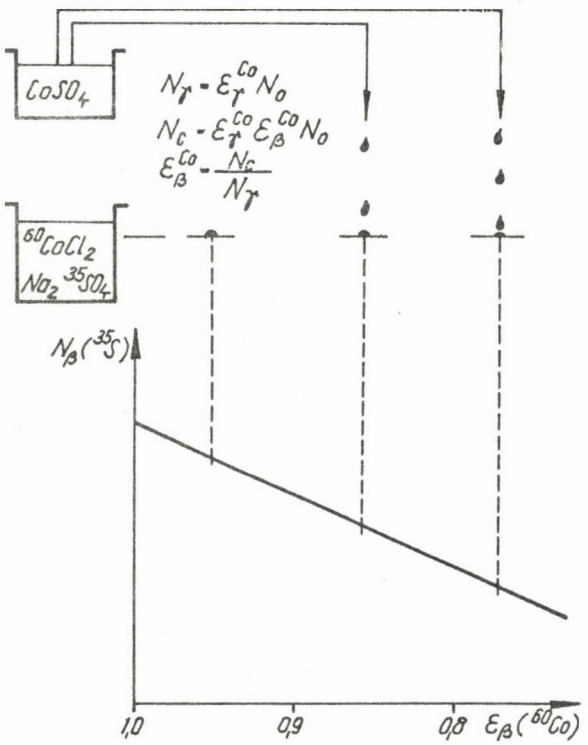


3. ábra

A detektornak az α- és β-részecskék számlálására szolgáló része 4π térszögü, pill-box tipusu gázáramlásos proporcionális számláló, a γ-fotonokat pedig, a nagyobb térszög érdekében, két NaI/Tl/-szcintillátoros detektorral

számoljuk, melynek jelei keverő egységen keresztül jutnak a γ-csatornába. Az elektronikus egységek közül a mérés szempontjából leglényegesebbek, mint például a koincidenciaegység, az időzitő, az OMH-ban készült, a többit készen vásároltuk. Jelenleg uj berendezést is készitünk, továbbfejlesztett detektorokból és integrált áramkörös egységekből. A jelenleg használt kétszálas proporcionális kamra helyett többszálast alkalmazva, az átlagos beütésszám az eddigi 10^4 s^{-1}-ről előreláthatólag 10^5 s^{-1}-re növelhető. Igy azonos statisztikus hiba mellett a mérésidő tizedrészére csökkenthető. A két ϕ 50 x 32 mm NaI/Tl/ kristály helyett egy ϕ 75 x 50 mm méretü kristályt fogunk használni.

Gyakran használjuk a 4πα/β/ módszert is. Ehhez több mérőberendezésünk is van. A számlálók itt is gázáramlásos proporcionális számlálók, melyeket általában $E_{\beta\ max} > 1$ MeV feltételt kielégitő tiszta β-sugárzók, pl. ^{32}P és ^{90}Y mérésére használunk. Kisebb $E_{\beta\ max}$ energiáju izotópokat /pl. ^{35}S, ^{45}Ca, ^{63}Ni, stb./ az önabszorpciós tényező megfelelő pontosságu meghatározására nyomjelző módszerrel mérünk[7]. A nyomjelző módszer alkalmazását a 4. ábra szemlélteti.

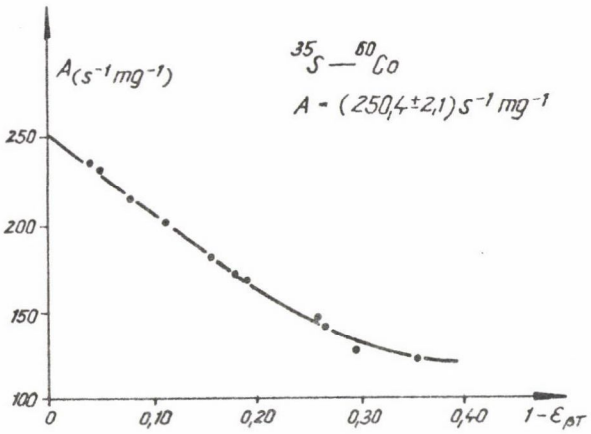


4. ábra

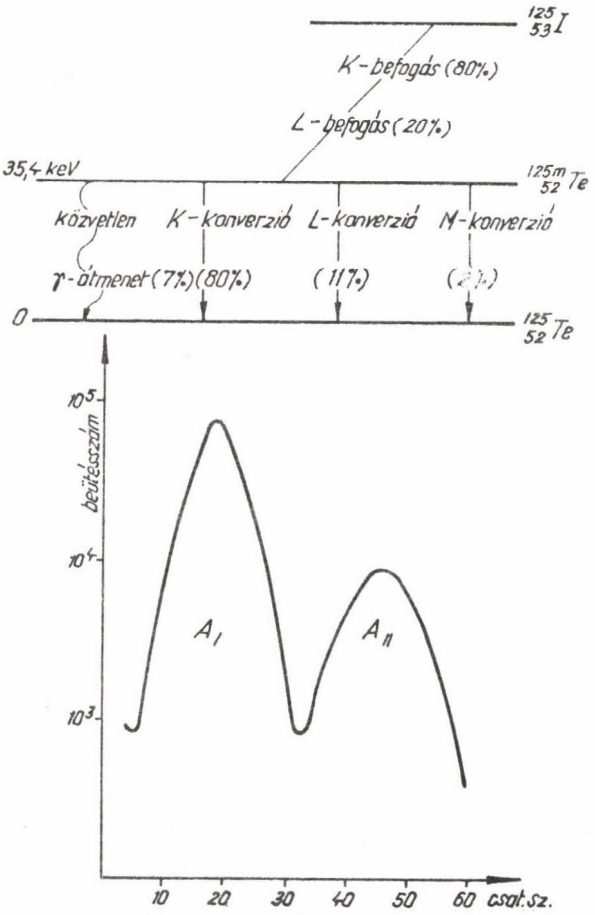
A tiszta β-sugárzó izotóphoz megfelelően választott β - γ-koincidencia-módszerrel pontosan mérhető nyomjelző izotóp meghatározott mennyiségét adjuk. Ezután különböző szilárdanyag-tartalmu, s igy különböző ε_β hatásfoku mérőmintákat készitünk, és mérjük a nyomjelző izotóp $\varepsilon_{\beta T}$ hatásfokát. Ha a mérendő izotóp radioaktiv koncentrációjának értékét a nyomjelző izotóp $\varepsilon_{\beta T} = N_c/N_\gamma$ hatásfokának függvényében ábrázoljuk akkor a görbe $\varepsilon_{\beta T} = 1$ értékre történő extrapolálásával kapjuk a tényleges aktivitás /radioaktiv koncentráció/ értékét. Az 5. ábrán a ^{35}S /$E_{\beta max}$= =167 keV/ ^{60}Co nyomjelző izotóppal történő mérésekor kapott extrapolációs görbe látható.

A radioaktiv izotópok egy részének /pl. a ^{125}I-nek/ az aktivitását az u.n. összegkoincidencia-módszerrel mérhetjük[8]. A ^{125}I izotóp bomlási sémáját és sokcsatornás amplitudóanalizátorral felvett spektrumát a 6. ábrán láthatjuk.

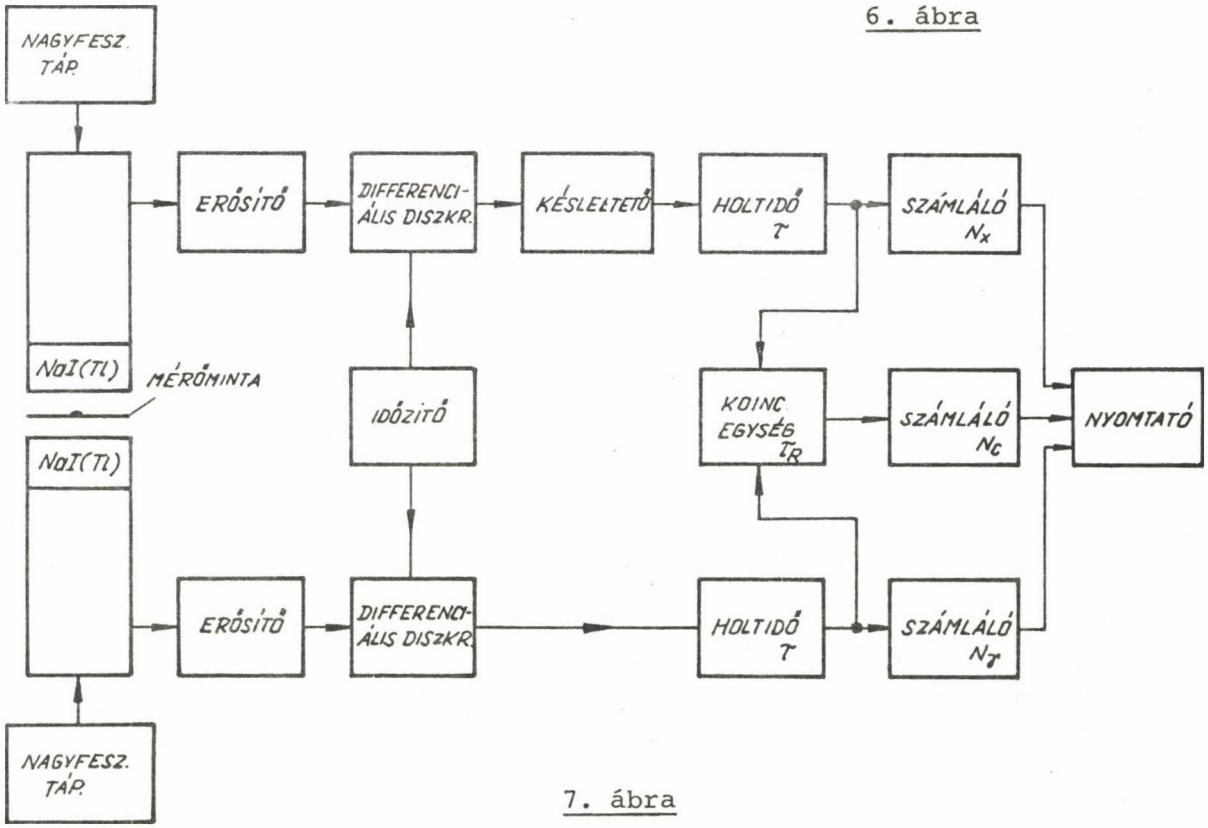
A mérés azon a tényen alapszik, hogy a NaI/Tl/ szcintillációs detektor és az elektronika időfelbontó-képessége néhány μs, igy az elektronbefogást és



5. ábra



6. ábra



7. ábra

a belső konverziót követően 10^{-9} s-on belül a kristályba érkező 27,4 keV-es fotonokat az energiák összegének megfelelő energiával rendelkező egyetlen fotonként érzékeli. Igy a szcintillációs detektorral mért energiaspektrumban a 27,4 keV-es csucs mellett egy 54,8 keV-es összegcsucs is található. A csucsok alatti területből a minta aktivitása meghatározható.

A radioaktiv izotópok másik csoportjának aktivitását X - γ-koincidenciamódszerrel mérjük[9]. Ez a módszer akkor alkalmazható, ha az elektronbefogást egy vagy több γ-foton követi, mint például az ^{88}Y és a ^{133}Ba izotópok esetén. A röntgen-fotonok detektálásához külön erre a célra készitett, 1 mm vastagságu, Be-ablakos NaI/Tl/ kristályt használunk. A berendezés tömbvázlata a 7. ábrán látható. A mérési eredmények kiértékelése a β - γ-koincidenciamódszernél ismertetettekhez hasonlóan történik.

Az eddig tárgyalt mérési módszerek segitségével a legtöbb radioaktiv izotóp aktivitását abszolut módszerrel* tudjuk mérni.

A pontosság növelése és az optimális mérési módszer alkalmazása érdekében azonban a közeljövőben további módszerek és mérőberendezések kidolgozását is tervezzük. Folyamatban van egy 4π X- γ-koincidenciaberendezés készitése, ahol az X-detektor nagynyomásos 4π-proporcionális gázszámláló lesz. Ezenkivül a közeljövőben a folyadékszcintillációs mérőmódszert is szeretnénk alkalmazni etalonok készitésére kis maximális energiáju, tiszta β-sugárzó izotópok, valamint bizonyos elektronbefogásos izotópok esetén.

Az abszolut mérőmódszerek mellett őket jól kiegészitő relativ módszereket is használunk, melyek közül csak a gyakorlatban a legfontosabbat, a 20 atm nyomásu argonnal töltött, aknás ionizációs kamrával történő mérést említenénk. Az ionizációs kamra kalibráló görbéjét üvegampullába zárt radioaktiv folyadéketalonokkal határoztuk meg. A kalibráló görbe lehetővé teszi 10^{-6} - 10^{-1} Ci rádiummal ekvivalens sugárforrások /a létrehozott ionizációs áramok megegyeznek/ aktivitásának gyors és pontos mérését. Ezenkivül még más ionizációs kamráink is vannak, amelyekkel pl. ^{60}Co zárt sugárforrások egészen 1 Ci-ig mérhetők. A kamrák ionizációs áramát az OMH-ban kifejlesztett integrált áramkörös árammérővel mérjük[10].

A MÉRÉSI EREDMÉNYEK KIÉRTÉKELÉSE

Mint már a β- γ-koincidenciamódszer ismertetésekor emlitettük, az igen egyszerüen felirható /1/ egyenlet a gyakorlatban lényegesen bonyolultabb, s a legfontosabb korrekciók figyelembevétele után az alábbi formában irható:

---

*Abszolut mérésről akkor beszélünk, ha a mérést a mennyiség meghatározása alapján, az alkalmazott mértékrendszer alapegységeinek mérésére vezetjük vissza.

$$A_{ik}=\frac{\left[\left(\frac{N_{\beta ik}}{t_i}-\frac{B_\beta}{t_B}\right)\left(\frac{N_{\gamma ik}}{t_i}-\frac{B_\gamma}{t_B}\right)\right]\left[1-\tau_R\left(\frac{N_{\beta ik}}{t_i}-\frac{N_{\gamma ik}}{t_i}\right)\right]}{\left[\left(\frac{N_{cik}}{t_i}-\frac{B_c}{t_B}\right)-2\tau_R\frac{N_{\beta ik}}{t_i}\frac{N_{\gamma ik}}{t_i}\right]\left(1-\tau\frac{N_{cik}}{t_i}\right)}\cdot\frac{1}{1-\frac{1\,\varepsilon_{\beta ik}}{\varepsilon_{\beta ik}}C\left[(\varepsilon_\beta)_\gamma,\varepsilon_\gamma\right]}\cdot\exp\frac{T_{ik}-T_o}{\Theta}$$

ahol

A_{ik}	- az aktivitás értéke az i-edik mérőminta k-adik mérésénél a T_o vonatkozási időpontban
$N_{\beta ik}$, $N_{\gamma ik}$ és N_{cik}	- a t_i idő alatt az i-edik mérőminta k-adik mérésénél a β-, γ-, illetve koincidenciacsatornában mért beütésszám
B_β, B_γ és B_c	- a t_B idő alatt a megfelelő csatornákban mért háttérimpulzusok száma
$\tau_\beta = \tau_\gamma = \tau$	- a β-, illetve a γ-csatorna holtideje
τ_R	- a koincidenciafelbontási idő
T_{ik}	- a mérés időpontja
ϑ	- a mért izotóp közepes élettartama
$\varepsilon_{\beta ik}$	- a β-hatásfok az i-edik mérőminta k-adik mérésénél
$C\left[(\varepsilon_\beta)_\gamma,\varepsilon_\gamma\right]$	- a mérőberendezéstől, a beállitástól, valamint az adott izotóptól függő korrekciós tényező.

Hasonló a helyzet a többi módszernél is, igy, miután a mérési módszert és a berendezést kifejlesztettük, az etalonok készitésénél a legidőigényesebb munka általában a mérési eredmények kiértékelése. A koincidenciamódszernél pl. már egyszerü esetben is /1 higitás, 7 mérőminta és mintánként 6x100 s mérés/ a kiértékelés közel 1000 számolási müveletet igényel. A nemzetközi összehasonlitó mérések során a mérési eredmények megbizhatósága és pontossága különösen fontos. Ilyenkor a rutinjellegü etalonkészitésnél általában szokásos mérések többszörösét is elvégezzük. A kézi számolás nemcsak több hibával járhat, hanem lassu is, az eredményt csak napokkal a mérés után kapjuk meg. Ha tehát a mérést meg kell ismételni, ez csak az előzőektől eltérő feltételek mellett lehetséges, s igy a hiba oka sok esetben már nem is derithető ki.

Az első lépést a mérési eredmények gyorsabb és gazdaságosabb feldolgozása felé az elmult évben tettük meg: beszereztünk egy Hewlett-Packard gyártmányu, 9100A tipusu asztali számitógépet kinyomtatóval.

A közeljövőben készül el az uj koincidenciamérő berendezésünk, melyhez szalaglyukasztó is csatlakozik. Reméljük, hogy egyidejüleg sikerül a mérési adatokat közvetlen számitógéppel feldolgozni.

Ezuton is szeretnénk köszönetet mondani Juhász Endre és Zsdánszky Kálmán tudományos osztályvezetőnek az etalonok készitésénél felmerülő problémák megoldásához nyujtott segitségükért, valamint Antal Lajos kollegánknak az ábrák gondos elkészitéséért.

IRODALOM

1. Report on the International Comparison of Dilution and Source Preparation Methods by means of ^{60}Co, BIPM, /1967. szept./
2. *Barta T., Jedlovszky R., Szörényi Á.*, Radioaktiv etalonok készitésének néhány kérdése, Izotóptechnika 17 /1973/ 135
3. *Erbeszkorn L, Szokolyi L., Szörényi Á., Zsdánszky K.*, Herstellung fester ^{60}Co-Strahlungsquellen hoher Genauigkeit im Aktivitätsbereich 1-100 mCi, Isotopenpraxis 6 /1970/ 80
4. *Robinson, P.S.*, The Production of Radioactive Sources by the Electrospraying Method, Nucl. Instr. Methods, 40 /1966/ 136
5. *Parker, W., Falk, R.*, Molecular Plating: A Method for the Electrolytic Formation of Thin Inorganic Films, Nucl. Instr. Methods, 16 /1962/ 355
6. ICRU Report 19, Radiation Quantities and Units 1971.
7. *Szokolyi L., Szörényi Á.*, Метод изготовления жидких образцов чистых β-излучателей повышенной точности, Симп.Новые методы приготовки радиоактивных препаратов, Варшава, декабрь 9-13, 1969
8. *Erbeszkorn L., Szokolyi L., Szörényi A., Zsdánszky K.*, A ^{125}I izotóp abszolut aktivitásának meghatározása, Atomtechn. Táj. 11 /1968/ 358.
9. *Paske, R.E.A.*, The Absolute Standardization of Barium-133, AERE-R 5341 Report, 1970
10. *Zsdánszky K.*, The Design of High Impedance Measuring Circuits of High Accuracy for Picoamper Measurements, V. IMEKO Konferencia, Versailles, 1970 május 25-30.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 3. szám.

RADIOAKTIV ETALONOK KÉSZITÉSÉNEK NÉHÁNY KÉRDÉSE *

Barta T., Jedlovszky R., Szörényi Á.
Országos Mérésügyi Hivatal, Budapest

A radioizotópos tisztaság vizsgálata. A radioaktiv koncentráció értékének bizonytalansága. A nemzetközi összehasonlitó mérések fontossága.

Некоторые вопросы изготовления радиоактивных эталонов
Барта, Т., Едловски, Р., Сёрени, А.

Определение радиоактивной чистоты. Неточность данных радиоактивной концентрации. Значение международных соизмерений.

Some Problems of the Preparation of Radioactive Standards
Barta, T., Jedlovszky, R., Szörényi, Á.

Control of radioisotopic purity. Inaccuracy of radioactive concentration values. Importance of international comparative measurements.

A radioaktiv etalonok készitésének radiokémiai problémáit, az aktivitásmérés különféle módszereit és a mérési eredmények kiértékelését az /1/ közleményben tekintettük át részletesebben. A jelen közlemény a radioaktiv etalonok készitésével kapcsolatos egyéb kérdésekkel, igy a radioizotópos tisztaságvizsgálattal, a megadott aktivitás /radioaktiv koncentráció/ értékének bizonytalanságával, valamint a nemzetközi összehasonlitó mérések jelentőségével foglalkozik.

A radioizotópos szennyezettség vizsgálata a radioaktiv etalon-sugárforrások adatainak pontos és megbizható mérésével kapcsolatban merül fel.

A pontosság és megbizhatóság növelésének egyik lépése volt az, hogy 1968-ban megalakult az OMH Sugárfizikai Mérések Osztályának Magspektrometriai Laboratóriuma, amelynek fő feladata a radioaktiv etalon-sugárforrások radioizotópos szennyezettségének vizsgálata.

Egy radioaktiv sugárforrást akkor mondunk radioizotóposan szennyezett-

* A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai SZakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

nek, ha a névleges radioaktiv izotóp és leányelemei mellett egyéb radioaktiv izotópokat is tartalmaz.

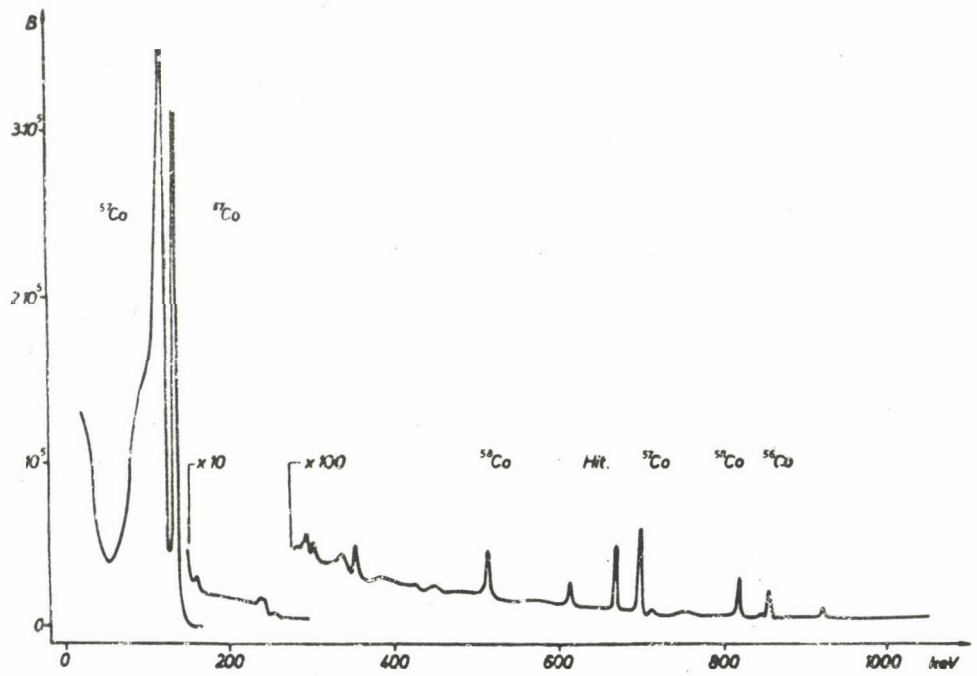
A radioizotópos szennyezettséget szennyező komponensenként az alábbi összefüggés szerint adják meg:

$$\text{radioizotópos szennyezés /\%/} = \frac{\text{a szennyező komponens aktivitása}}{\text{a névleges radioaktiv izotóp aktivitása}} \times 100\ \%$$

Ez az érték minden esetben csak a vonatkoztatási időpontban érvényes, mivel a szennyező és a névleges radioaktiv izotóp bomlási állandója különböző. Amennyiben a névleges radioaktiv izotóp bomlási állandója a szennyezőénél nagyobb, akkor rövid idő alatt az utóbbi kerül tulsulyba. Ezért nagyon fontos a radioaktiv etalonok radioizotópos szennyezőinek ismerete az etalon készitésénél és felhasználásánál egyaránt.

Ezen a helyen az α-, β- és γ-sugárforrásokban levő γ-szennyezés meghatározásával foglalkozunk.

A radioaktiv γ-szennyezők minőségi és mennyiségi analiziséhez elegendő információ kapható a vizsgálandó sugárforrás γ-energiaspektrumából. Az 1. ábrán lévő spektrumban a csucsok helye a detektált sugárzás energiájára és ezen keresztül a sugárforrás minőségi összetételére, a csucsok nagysága pedig a sugárforrás összetevőinek a mennyiségeire jellemző.



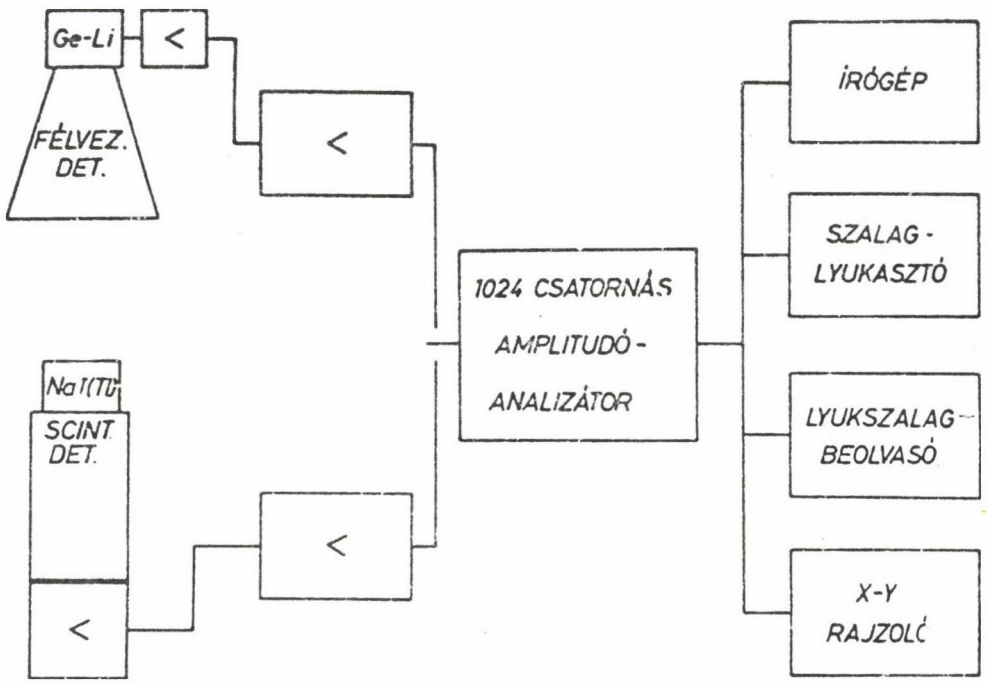
1. ábra

^{57}Co tisztaságvizsgálata

A spektrumanalizis e módszerét többek között Routti és Prussin[2] dolgozta ki, és fotocsucsmódszernek nevezte el.

Az előbbi spektrumban a ^{57}Co bomlási sémájának megfelelő spektrumvonalak mellett egyéb vonalak is szerepelnek. Ezek a vonalak részben a ^{56}Co és ^{58}Co szennyező izotópoktól, részben a háttértől és az energiaskála hitelesitésére szolgáló etalon-sugárforrástól származnak.

A következőkben ilyen γ-spektrumok felvételére alkalmas spektrométerek felépitését és főbb jellemzőit ismertetjük. A spektrométerek tömbvázlata a 2. ábrán látható.



2. ábra

γ-spektrométer tömbvázlata

A Ge/Li/ detektor érzékeny térfogata 20 cm^3. A detektort cseppfolyós levegő hőmérsékletén tartjuk. A detektor energiafelbontó képessége a ^{60}Co 1332 keV-os energiavonalára vonatkoztatva 4,1 keV /FWHM/. A detektorhoz kis zaju, töltésérzékeny előerősitő csatlakozik. Az előerősitő zaja 0 pF bemeneti kapacitás esetén 1,07 keV, kapacitás tényezője 0,016 keV/pF. Az előerősitőhöz Canberra gyártmányu főerősitő csatlakozik, amely a jel/zaj viszony javitására differenciáló és integráló jelformáló áramköröket tartalmaz. A jelformáló időállandók 0,25 és 4 μs között változtathatók. Az erősitők ál-

tal megfelelően felerősitett jeleket Nuclar Data 1024-csatornás amplitudóanalizátor dolgozza fel. Az analizátor mindazokkal a tulajdonságokkal rendelkezik, amelyeket egy modern analizátortól megkövetelhetünk, igy pl. lehetőség van u.n. digitális kivonásra, a holtidő automatikus korrigálására, a felvett spektrumokból egyes tartományok digitális kiválasztására, stb. Az analizátor memóriájában tárolt információ IBM-irógéppel kiirható, vagy Hewlett Packard XY rajzolóval kirajzolható. Az adatok Tally gyártmányu lyukasztóval is rögzithetők, és lehetőség van az ASC II kód szerinti lyukszalagok analizátorba való visszajátszására is, egy ugyancsak Tally gyártmányu lyukszalagolvasó berendezéssel. A lyukszalagok számitógépes feldolgozását a KFKI ICT 1905 tipusu számitógépén végezzük. Amint az ábrán látható, félvezető detektor helyett szcintillációs detektort is alkalmazhatunk. Ebben az esetben a Gamma Müvek által gyártott szcintillációs detektorokat használjuk. A detektorok relativ energiafelbontó képessége ϕ 40x40 mm méretü kristály esetén 8,5 %, ϕ 76x76 mm méretü kristály esetén 9,5 %, a ^{137}Cs 661,6 keV-nak megfelelő γ-energiavonalára vonatkoztatva. A berendezéshez természetesen tápegységek és egyéb kiegészitő egységek is tartoznak, amelyeket az egyszerüség kedvéért az ábrán nem tüntettünk fel.

Ezután térjünk vissza egy kissé részletesebben a szennyezés meghatározásának problémájára. A fentiekben láttuk, hogy a szennyezést a névleges és a szennyező radioaktiv izotóp aktivitásából számitjuk ki.

Az aktivitásokat a már emlitett fotocsucsmódszerrel határozzuk meg, a következő összefüggés alapján:

$$A = \frac{B}{3{,}7.10^{4}.b.\eta.t} \quad \mu Ci$$

ahol B - a fotocsucsban lévő beütésszám;

b - az ágarány-tényező, amely azt mondja meg, hogy az adott izotóp bomlása során a bomlások számának hány százalékában keletkezik adott E energiáju foton. A b ilymódon az adott E energiáju sugárzás relativ intenzitását is jelenti;

η - a detektor energiafüggő detektálási hatásfoka;

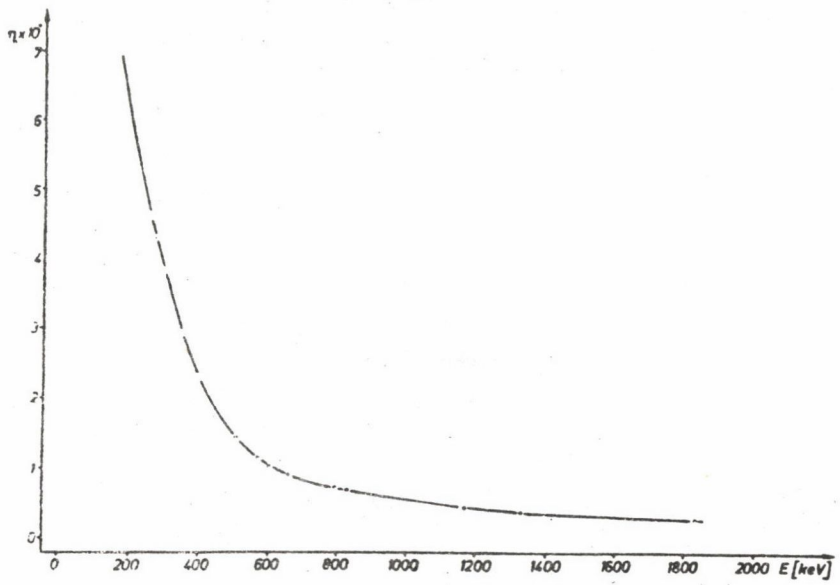
t - a mérési idő /s/.

A B-t ugy kapjuk meg, hogy a fotocsucs teljes szélességének megfelelő csatornák beütésszámát összeadjuk, és az összegből kivonjuk a fotocsucs melletti spektrumszakaszok alapján lineárisan vagy más módon extrapolált hátteret.

A b ágarány-tényező izotóptáblázatból olvasható ki.

Az η hatásfok értékeit az E energia függvényében külön méréssorozattal határozzuk meg, és ezen adatok alapján szerkesztjük meg a detektálási hatásfok

- energia görbét. Ennek az u.n. hatásfokkalibrálásnak a során pontosan ismert energiáju és aktivitásu sugárforrásokkal, rögzitett geometriai elrendezés mellett, γ-spektrumokat veszünk fel. A kalibráló sugárforrások aktivitásértékeiből kiszámitjuk a kiválasztott energiával kilépő fotonok számát. Ezután a spektrumban megkeressük a kiválasztott energiának megfelelő fotocsucsot, és meghatározzuk a csucsban lévő beütésszámot. Az igy kapott két szám hányadosát nevezzük fotocsucs-hatásfoknak. A 3. ábra 20 cm^3-es Ge/Li/ detektor fotocsucshatásfokgörbéjét mutatja, az energia függvényében. A mérési pontokhoz a legkisebb négyzetek módszerével ötödfoku polinomot illesztettünk.

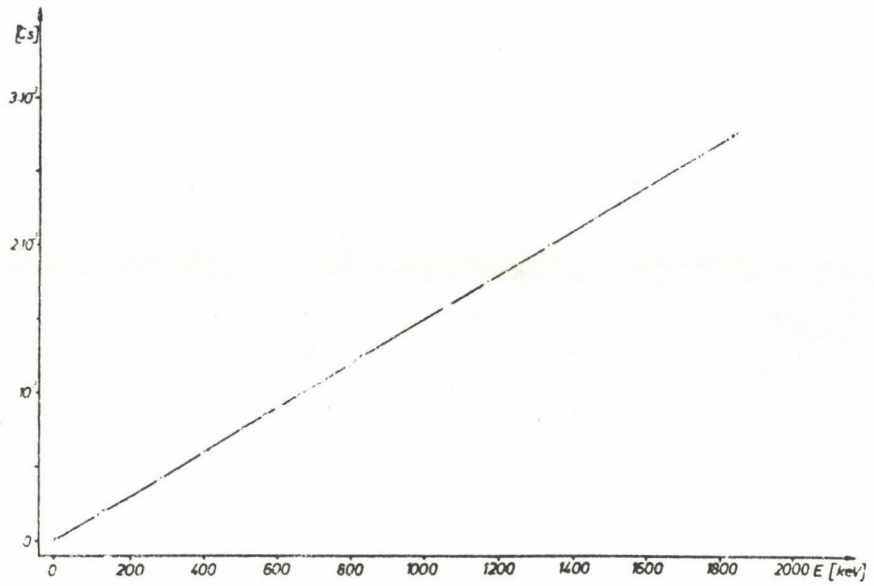


3. ábra

Hatásfok-kalibráció

A t mérési időt az analizátor méri, és automatikusan figyelembe veszi a holtidő miatti mérési időveszteséget.

Beszélni kell még egy, a képletben nem szereplő, de az η és a b értékek meghatározásához szükséges jellemző adatról. A csucs helyéről, illetve az annak megfelelő energiáról van szó. Pontosan meg kell határozni a csatornaszám - energia összefüggést, az u.n. energiakalibrálási görbét, az alábbiak szerint. Ismert energiáju forrásokkal γ-spektrumokat veszünk fel, meghatározzuk az ismert energiáknak megfelelő csucsok helyét csatornaszámban, és a csatornaszám-értékeket a hozzájuk tartozó energia függvényében ábrázoljuk. Ilyen energiakalibrálásigörbét mutat a 4. ábra. A mért pontokhoz ebben az esetben is ötödfoku függvényt illesztettünk. Az illesztésből látható, hogy a kalibráló görbe, félvezető detektor esetén, a 0-2 MeV energiatartományban, $\pm$ 0,005 %-on belül lineáris. A görbe segitségével meghatározott energiák ismeretében és az előbbiek szerint kiszámolt intenzitásértékek alapján, táblázatok segitségével állapithatjuk meg a mért forrásban jelenlévő radioaktiv szennyezéseket.



4. ábra

Energia-kalibráció

A szcintillációs detektorok felhasználását tisztaságvizsgálataink során - mivel energifelbontóképességük több, mint egy nagyságrenddel rosszabb a félvezető detektorokénál - speciális esetekre korlátoztuk. Ha ismert energiáju, de igen kis mennyiségben jelenlévő szennyező izotóp mennyiségét akarjuk meghatározni, szcintillációs detektort alkalmazunk, mivel detektálási hatásfoka, méreteinél és egyéb tulajdonságainál fogva, lényegesen nagyobb, mint a félvezető detektoré. 45 cm^3 érzékeny térfogatu Ge/Li/ detektor 1332 keV-on mért detektálási hatásfoka csak mintegy 12 %-a egy 76x76 mm-es NaI/Tl/ szcintillátor hatásfokának.

A fentiek során ismertetett eljárással igen sokfajta etalon-sugárforrás tisztaságvizsgálatát végeztük el az elmult években. Az 1. táblázatban az OMH által 1972-ben készitett γ-spektrometriai etalonsorozat tisztaságvizsgálati eredményeit foglaljuk össze.

A táblázatban szereplő bizonyos izotópoknál radioizotópos szennyezést nem tudunk kimutatni, ezért ezekben az esetekben a *-gal jelölt, u.n. kimutathatósági határokat adjuk meg. Ez az az érték, amelynél a jelenlegi berendezésünkkel már nem észlelhető, de esetleg még jelenlévő szennyezés feltétlenül kisebb. A vonatkoztatási energia azért 122 keV, mert a vizsgált tartomány /100 keV - 2 MeV/ kis energiáju végén legkedvezőtlenebbek a viszonyok, továbbá a ^{57}Co 122 keV-nek megfelelő spektrumvonalát használhatjuk hitelesitési célokra.

1. táblázat

Az OMH γ-spektrometriai etalonsugárforrás-sorozat radioizotópos tisztaságvizsgálati eredményei

Sugárforrás	A szennyező radioaktiv izotóp		
	fajtája	koncentrációja /%/	felezési ideje
^{241}Am	-	< 0,05 *	-
^{57}Co	^{56}Co	0,3 ± 0,1	77,3 nap
	^{58}Co	1,1 ± 0,2	71,3 nap
	^{60}Co	0,025 ± 0,007	5,27 év
^{203}Hg	-	< 0,1 *	-
^{22}Na	-	< 0,1 *	-
^{137}Cs	^{134}Cs	1,4 ± 0,3	2,04 év
^{54}Mn	-	< 0,1 *	-
^{60}Co	-	< 0,1 *	-
^{88}Y	-	< 0,1 *	-

*122 keV-re vonatkozó adat.

Ugy gondoljuk, hogy az OMH által készitett radioaktiv etalonok használhatóságához nagymértékben hozzájárul a radioizotópos tisztaságvizsgálat is. Igaz, hogy jelenleg még csak a γ-sugárzó szennyezések mérése folyik, azonban reméljük, hogy hamarosan a β-szennyezések, később az α-szennyezések meghatározásával is tudunk foglalkozni.

Ezután vizsgáljuk meg, hogyan történik az aktivitás /radioaktiv koncentráció/ értéke bizonytalanságának a meghatározása.

Minden mérésnél a mérési eredménynek csak a bizonytalanság ismeretében és megadásával együtt van értelme. Ez különösen érvényes az etalonoknál, amikor az etalon adatai további mérések alapját képezik /pl. magspektrometriai adatok meghatározása, félvezető γ-spektrométerek hatásfokgörbéjének felvétele stb./. Igy magától értetődő, hogy egy radioaktiv etalon-sugárforrás beszerzésénél az egyik kiválasztási szempont az igért mérési pontosság. Az elmult években szerzett tapasztalataink azonban azt mutatják, hogy a mérési bizonytalanság megadásában igen sokféle, egymástól lényegesen különböző módszert alkalmaznak nemcsak a radioaktiv etalonokat forgalmazó cégek, hanem a

radioaktiv izotópok metrológiájával foglalkozó tudományos intézetek is. Az előbbiek részéről bizonyos fokig érthető, hogy azt a hibaszámitási eljárást részesitik előnyben, amely a legkisebb értékre vezet.

A mondottak alátámasztására vizsgáljuk meg, hogy néhány intézmény hogyan adja meg a radioaktiv etalonok aktivitásának bizonytalanságát.

Elsőként a radioaktiv etalonokat forgalmazó egyik legnagyobb cég, a Radiochemical Centre, Amersham /RCC/ módszerét vizsgáljuk meg[3].

A radioaktiv etalonokhoz mellékelt bizonyitványaikban megtalálható a véletlen és a rendszeres hiba, valamint összegzett értékük is.

A véletlen hibát /random error/ ismételt mérésekkel határozzák meg és szórásként /standard deviation (σ)/ adják meg. A ($\pm$ 3σ) jó közelitéssel a véletlen hibának tulajdonitható összbizonytalanság.

A rendszeres hiba /systematic error/ meghatározása már sokkal nehezebb. Tulajdonképpen az a mximális érték, mely a rendszeres eltérések korrekcióbavétele után is, mint hiba, a mérési eredmény bizonytalanságát növeli /maximum residual systematic error (+δ, -δ')/. A továbbiakban rendszeres hibán mindig az utóbbi (+δ, -δ') értéket értjük. Ez a hiba függ az alkalmazott korrekciók nagyságától, a bomlási sémától, valamint az alkalmazott mérési módszertől. A +/3σ+δ/ és -/3σ+δ'/ adja a maximális összbizonytalanságot. Ennek megadása azonban, véleményünk szerint, tul pesszimista, s mivel a legtöbb ember az 1 σ-nak megfelelő megbizhatóságot használja szivesebben, ezért a katalógusban az

$$\frac{1}{6}\left[(3\sigma+\delta) + (3\sigma+\delta')\right]$$

értéket adják meg, melyet "Effective Standard Deviation"-nak /E.S.D./ nevezznek. Láthatjuk, hogy ez az érték csak a ($\pm\sigma$) megbizhatóságu véletlen hiba, valamint a rendszeres hiba harmadrésze összegének felel meg.

A csehszlovák Izotóp Intézet /UVVVR, Prága/ katalógusában minden etalonnál kétféle hibaérték található[3]. Az egyik a szórás (σ), mely megadja azt az intervallumot, amelyen belül az etalon aktivitásának tényleges értéke 68,3 % valószinüséggel található, a másik érték a 99 %-os megbizhatósági tartományhoz tartozó érték, mely közelitőleg a szórás háromszorosa ($\pm$3σ). Ehhez még azt a megjegyzést füzik, hogy mindkét adat tartalmazza a véletlen hibát, valamint más becsült hibákat, melyeknek maximális értékét vették figyelembe. Azt, hogy a véletlen hibát milyen módon összegezték az egyéb becsült hibákkal - ez pedig sokféle módon lehetséges - nem közlik.

A Nemzetközi Atomenergiai Ügynökség /IAEA/ az elmult években kibocsátott radioaktiv etalonok mérési bizonyitványaiban megadta a véletlen hibát 95 %

megbizhatóságnál, valamint a maximális rendszeres hibát is. A mérési bizonytalanságot ezeknek egyszerü összegezésével számitották. Néhány izotóp esetében a katalógusban vagy mérési bizonyitványban található bizonytalanságot a 2. táblázatban adtuk meg. Kiegészitésül közöljük az OMH által megadott értékeket is.

2. táblázat

Izotóp jele	RCC	σ = 68,3 %	UVVVR 3σ = 99 %	IAEA	OMH
^{35}S	3,0 %	1,5 %	4,5 %	$\pm$2,1 %	$\pm$3 %
^{60}Co	0,3 %	0,9 %	2,5 %	$\pm$0,6 %	$\pm$1 %
^{137}Cs	2,0 %	1,2 %	3,5 %	$\pm$1,3 %	$\pm$2 %
^{203}Hg	0,5 %	2,5 %	7,0 %	$\pm$0,9 %	$\pm$1,5 %

Ebből a néhány példából is láthatjuk, hogy a számitási módszer ismeretének hiányában, de még ismeretében is, igen nehéz eldönteni, hogy melyik érték felel meg kisebb bizonytalanságnak.

Jelenleg nincs még a bizonytalanság meghatározására nemzetközi megállapodás, s a tavaly augusztusban megrendezett, a radioaktiv izotópok metrológiájával foglalkozó I. Nemzetközi Nyári Iskola /Hercegnovi, Jugoszlávia/ tapasztalatai azt mutatják, hogy a közeljövőben nem is várható ilyen. Általános szabályként elfogadhatjuk azonban, hogy a rendszeres és a véletlen hibákat külön-külön kell megállapitani. A véletlen hibát ismételt mérésekből állapithatjuk meg, a rendszeres hibákat becsüljük, vagy kiegészitő mérésekkel határozzuk meg. Az utóbbi értékeknek igy nincs határozott eloszlása, ezért a véletlen hibákkal nem lenne ajánlatos kombinálni őket. A radioaktiv etalonok felhasználóit azonban, tapasztalataink szerint, a megadott aktivitásérték összbizonytalansága érdekli, ezért mi ilyen bizonytalanságot adunk meg[5], és ezt az alábbi képlet alapján számitjuk:

$$\text{Összbizonytalanság} = t\sigma_a + \frac{\delta + \delta'}{2}$$

ahol $\sigma_a = \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$, azaz az átlagérték szórása;

n - a mérések száma;

t - a Student-faktor, mely a mérések számától és a kivánt megbizhatóságtól függ /pl. ha n = 7, és 99 %-os megbizhatóságot követelünk meg, akkor t = 3,499/.

δ, δ' - a mindkét előjelü rendszeres hibák értéke.

Az OMH ezen összefüggés alapján a 99 %-os megbizhatóságnál adja meg mérési bizonyitványaiban az összbizonytalanságot.

A pozitiv és negativ előjelü rendszeres hibákat (+δ, -δ) az azonos előjelü rendszeres hibák külön-külön történő aritmetikai összegzésével határozzuk meg.

A legkézenfekvőbb ezek után az lenne, hogy példán szemléltetnénk, mekkora összbizonytalanságot adnának meg az egyes intézmények azonos rendszeres és véletlen hibák esetén. Ez azonban, a rendelkezésünkre álló adatok hiányossága miatt, sajnos nem lehetséges. Ennek ellenére ugy hisszük, hogy az OMH kisebb értékeket ad meg, mint az RCC vagy az UVVVR, és nem sokkal nagyobbat, mint az IAEA.

1973. január 1-től mindkét hibát, valamint az ismertetett módon kapott összegüket is megadjuk a vizsgálati bizonyitványban. Reméljük, ezzel további hasznos információkhoz juttatjuk a felhasználókat. Ezen kivül foglalkozunk azzal is, hogy hogyan vegyük figyelembe az összbizonytalanság számitásánál az egyes hibákat, ha több, egymástól független módszerrel is meghatározzuk az aktivitás értékét, és ezek átlagát adjuk meg. Ezzel azonban itt most nem foglalkozunk részletesebben.

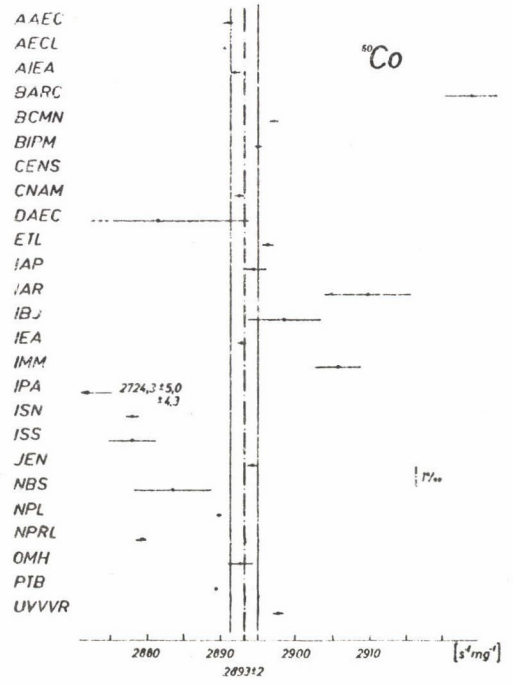
Térjünk rá a nemzetközi összehasonlitó mérések jelentőségére.

A radioaktiv etalonok készitésénél különféle mérési módszereket és mérőberendezéseket használunk, melyeket állandóan továbbfejlesztünk. Ezért elkerülhetetlen a rendszeres ellenőrzés, melyet két- vagy többoldalu nemzetközi összehasonlitó mérésekkel valósitunk meg. Ezek az aktivitásmérések nemzetközi egységesitése, valamint a mérések pontosságának növelése miatt is fontosak.

Az elmult években több összehasonlitó mérésben vett részt az OMH /^{60}Co, ^{90}Sr(+^{90}Y), ^{125}I, ^{137}Cs oldat; ^{60}Co és ^{54}Mn szilárd sugárforrások esetében/, melyek közül csak a ^{60}Co (1967) és a ^{90}Sr(+^{90}Y) (1971) oldatok és a ^{60}Co (1968) szilárd sugárforrások összehasonlitó mérését ismertetjük.

A ^{60}Co oldatok összehasonlitó mérését a Nemzetközi Suly- és Mértékügyi Hivatal /BIPM/ szervezte, s a világ összes jelentős, radioaktiv izotópok metrológiájával foglalkozó intézménye résztvett benne. Az előző összehasonlitó mérések tapasztalatai alapján, az egységesség érdekében, a BIPM minden szempontra részletesen kiterjedő leirást és ürlapot küldött a résztvevőknek. Minden résztvevő két ampullát /egy nagy és egy kis radioaktiv koncentrációjut/ kapott. Az egyiket közvetlenül, a másikat pedig higitás után kellett mérni. Az 5. ábrán láthatjuk a nagy radioaktiv koncentrációju oldatnál kapott mérési eredményeket. Az oldatra elfogadott érték /2893±2/ s^{-1} mg^{-1}, az OMH mérési eredménye /2892±2/ s^{-1} mg^{-1}. Ez volt az az összehasonlitó mérés, amely-

lyel az 1967-ben elkészült 4π α/β/-γ-koincidencia-berendezésünket ellenőriztük, s amely után tulajdonképpen a radioaktiv etalonok készitését megkezdtük.



5. ábra

^{60}Co-oldat összehasonlitó mérése
/BIPM/

1968-69-ben a KGST Szabványügyi Állandó Bizottsága szervezett összehasonlitó mérést ^{60}Co zárt szilárd sugárforrások aktivitásának meghatározására[7]. Az összehasonlitás célja a résztvevő országok által használt mérési módszerek és mérőberendezések jelenlegi szinvonalának, valamint a mérési hibák nagyságának megállapitása volt.

Az egyes országokból a következő intézmények vettek részt az összehasonlitó mérésben:

Össz-szövetségi Mérésügyi Tudományos Kutató Intézet /VNIIM/, Leningrád, Szovjetunió;

Országos Mérésügyi Hivatal /OMH/, Budapest, Magyarország;

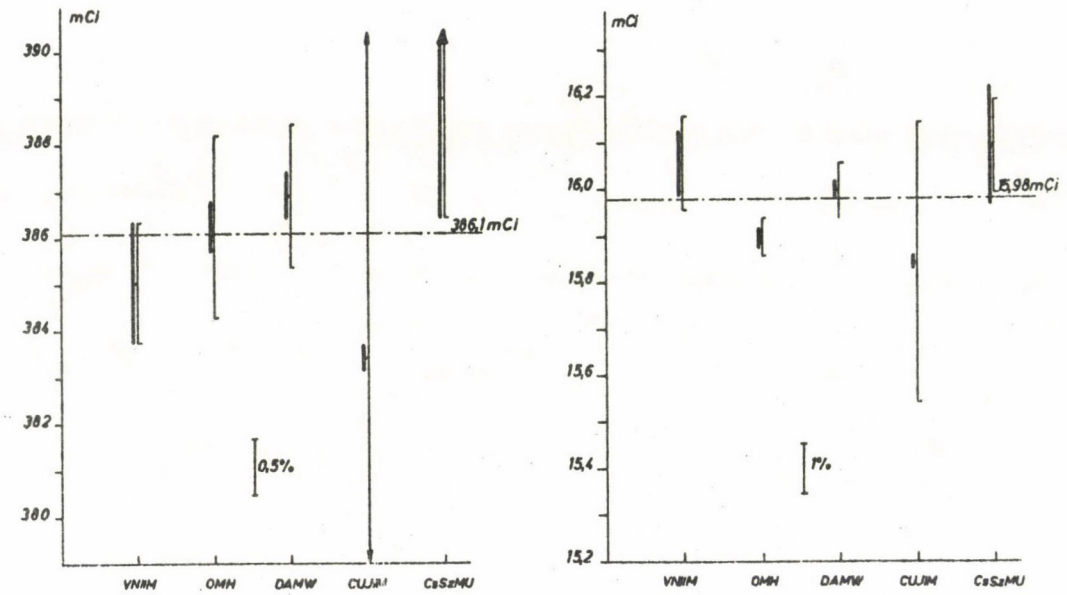
Német Mérésügyi és Minőségellenőrző Hivatal /DAMW/, Berlin, Német Demokratikus Köztársaság;

Központi Minőség- és Mértékügyi Hivatal /CUJM/, Varsó, Lengyelország;

Csehszlovák Mérésügyi Hivatal /CSMU/, Prága, Csehszlovákia.

Az összehasonlitó méréseket 400 mCi, illetve 20 mCi névleges aktivitásu

^{60}Co sugárforrással végeztük. A mérési eredményeket a 6. ábrán láthatjuk.



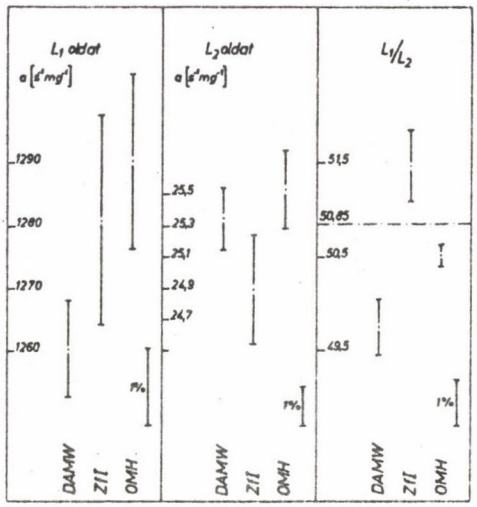
6. ábra

^{60}Co összehasonlító mérése
/KGST/

Feltüntettük a mérési eredmények átlagértékét is. A mért értékek rendszeres hibáját vékony, véletlen hibáját vastag vonallal jelöltük. A megadott aktivitásértékek 1969. január 1-re vonatkoznak. Az adatokból megállapithatjuk, hogy a különböző laboratóriumokban mért aktivitásértékek közötti eltérés a mérési bizonytalanságon belül van. A 20 mCi névleges aktivitásu sugárforrás esetében azért van nagyobb eltérés, mivel a VNIIM és a CSMU által megadott értékek az átlagértéket nagyon megnövelik. Véleményünk szerint - mérőberendezéseik és mérőmódszereik ismeretében - ezek a nagy értékek mérési módszereik pontatlanságából adódnak, s a tényleges érték közelebb van a DAMW, CUJM és az OMH értékeihez.

A Német Mérésügyi és Minőségellenőrző Hivatal /NDK/ 1970-71-ben összehasonlitó mérést szervezett $^{90}Sr/+^{90}Y$/ izotópokkal, ujonnan elkészitett 4π-α/β/ proporcionális kamrájának ellenőrzésére[8]. Az összehasonlitó mérésben a DAMW-én és az OMH-n kivül a Német Tudományos Akadémia Központi Izotóptechnikai Intézete /ZFI, Lipcse/ is résztvett.

Kétféle oldat radioaktiv koncentrációját kellett a résztvevőknek meghatározniuk. Az L_1 oldatból 3 higitást készitettünk 1:20, 1:60 és 1:100 arányban, az L_2 oldat radioaktiv koncentrációját közvetlenül határoztuk meg. A mérési eredmények 1970. szeptember 15-re vonatkoznak /7. ábra/.



7. ábra

$^{90}Sr(+^{90}Y)$ összehasonlitó mérése

Megállapithatjuk, hogy a három mérési eredmény középértékére vonatkoztatva a legnagyobb és a legkisebb érték különbsége az L_1 oldat esetében 2,3 %, az L_2 oldat esetében pedig 2,5 %, a számitott és becsült hibák nagyságát meghaladó érték. Ez a nagy eltérés elsősorban az önabszorpciós tényezők eltérő meghatározási módszere miatt van. A három intézmény mérési eredményeit, nevezetesen az L_1 és L_2 oldatok aktivitásarányait egybevetve a ZFI által a mérendő oldatok készitésekor mért tömegarányokkal, a DAMW, a ZFI és az OMH esetén rendre a következő értékeket kapjuk: 0,987; 1,012 és 0,994.

Ebből kitünik, hogy az OMH aktivitásméréseinek aránya közeliti meg legjobban a mérlegeléssel meghatározott tömegarányt. A jó egyezés természetesen nem egyértelmü bizonyitéka a helyes eredménynek, de növeli valószinüségét, mivel jó arányértéket kaphatunk a mindkét oldatnál fennálló, azonos előjelü és nagyságu rendszeres hiba esetében is. Az összehasonlitás következtében, mint a DAMW zárójelentéséből kiderül, a DAMW felülvizsgálja az önabszorpciós tényezőt meghatározó módszerét. Ugy gondoljuk, ez jó példája a nemzetközi összehasonlitó mérések szükségességének.

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség uj szolgáltatás bevezetését tervezi a közeljövőben, korlátozott számu, a radioaktiv izotópok metrológiájával foglalkozó intézmény részére. A terv szerint γ-sugárzó radioaktiv etalonok /$E_\gamma > 50$ keV/ folyamatos nemzetközi összehasonlitását biztositaná a résztvevő intézményeknek. Az összehasonlitás tervezett formájának az lenne az egyik legnagyobb előnye, hogy minden egyes mérésnél csak két ampullával kellene többet készitени és az IAEA-nak elküldeni, tehát gyakorlatilag többletmunka nélkül lenne biztositva az állandó ellenőrzés.

Az összehasonlitás az IAEA aknás ionizációs kamrájával történik, kisebb mint 0,1 %-os hibával a megadott minimális összaktivitásoknál nagyobb értékek esetén /pl. ^{241}Am-nál 100 μCi, ^{57}Co-nál 35 μCi, ^{60}Co-nál 15 μCi a minimális összaktivitás/. Az ampullák tetszés szerinti időben beküldhetők, és az IAEA táblázatok formájában, folyamatosan tájékoztatja a résztvevőket a mért értékekről. Természetesen a KGST keretében is sor kerül a jövőben további összehasonlitó mérésekre, igy ^{137}Cs oldat és szilárd sugárforrás, valamint ^{133}Ba oldat összehasonlitó mérése szerepel a tervben.

Végezetül szeretnénk megemliteni, hogy az 1972. szeptemberében Leningrádban tartott KGST metrológiai szakértői értekezlet az OMH aktivitásmérő berendezéseit elfogadta, és javasolta a Szabványügyi Állandó Bizottságnak, hogy a KGST etalonberendezés részeként hagyja jóvá.

Ezuton is köszönetet mondunk Zsdánszky Kálmán tudományos osztályvezetőnek a radioaktiv etalonok készitésénél felmerülő problémák megoldásában nyujtott segitségéért, Antal Lajos és Lueff Sándor kollegáinknak az ábrák gondos elkészitéséért, valamint Vladár Ildikónak a gépelésért.

IRODALOM

1. *Szokolyi L., Szörényi A.*, Radioaktiv etalonok készitése az Országos Mérésügyi Hivatalban. /Radioaktiv környezetvédelem és etalonok. MTA-MKE tudományos ülésszak, Sopron, 1972, Izotóptechnika 17 /1973/
2. *J.T. Routti, S.G. Prussin*, Photopeak Method for the Computer Analysis of γ-Ray Spectra from Semiconductor Detectors, Nucl. Instr. Methods 72 /1969/ 125
3. *G.R. Newbery*, Standards of Activity, Review 4, The Radiochemical Centre, Amersham. England, 1968
4. UVVVR katalógus, 1971.
5. ICRU Report 12, 1968.
6. *Szörényi A., Zsdánszky K.*, Beszámoló a BIPM által az aktivitásmérő módszerek egységesitésére és pontosságának növelésére szervezett nemzetközi összehasonlitó mérésekről, Atomtechn. Táj., 13 /1969/ 316
7. *Szörényi A.*, ^{60}Co zárt szilárd sugárforrások aktivitásának nemzetközi összehasonlitó mérése. Mérésügyi Közl., 11 /1970/ 38
8. *Szokolyi L., Szörényi A.*, Abszolutaktivitás-mérő berendezések nemzetközi összehasonlitása ^{90}Sr+^{90}Y izotópokkal, Mérésügyi Közl., 13 /1972/ 2. szám. 33

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 3. szám.

JELZETT JÓDTIROZINOK ÉS JÓDTIRONINOK SZÉTVÁLASZTÁSA ÉS SZÁZALÉKOS ELOSZLÁSUK MEGHATÁROZÁSA

Gyertyánfy G., Földes J., Kollin É.
Semmelweis Orvostudományi Egyetem I.sz. Belklinikája, Budapest

1,5x35 cm Sephadex G-25 fine oszlopon először a jódtirozint választják le piridin-ecetsav-víz pufferrel, majd az eluciót 0,01 N NaOH-val folytatják, végül a jódtironinokat oldják le.

Разделение меченых йодтирозинов и йодтиронинов и определение их перцентного распределения
Дьертянфи, Г., Фёльдеш, Й., Коллин, Э.,

Йодтирозин разделяясь буферным раствором пиридина, уксусной кислоты и воды на столбе, размером в 1,5x35 см типа Sephadex G-25 Fine.Элюция продолжается 0,01 Н NaOH , в конце йодтиронины растворяются.

Separation of Iodothyronins and Iodothyrosines and the Determination of Their Percentage Distribution
Gyertyánfy, G., Földes, J., Kollin, É.

Separation of iodothyrosines on a 1,5x35 cm Sephadex G-25 Fine column with pyridine-acetic acid-water puffer; elution with 0,01 N NaOH and dissolution of iodothyronines.

A véráramban jelenlevő négy jódozott aminosav, a monojódtirozin /MIT/, dijódtirozin /DIT/, trijódtironin /T_3/ és a tiroxin /$_4$/ szétválasztását és százalékos eloszlásuk meghatározását a kutatók kezdetben radioaktiv papir-, majd vékonyréteg-kromatográfiával végezték. Ezen aminosavakat futtatás előtt a szérumból izolálni kell. Az izolálás nehézkes és időtrabló művelet, és közben dejodálódási veszély is fellép. Az eljárások másik hátránya, hogy csak igen kis mennyiségü - néhány µl - anyag futtatható, igy nagy fajlagos aktivitásu kiindulási anyagra van szükség és a betegek sugárterhelése nagy.

Az utóbbi években egyre nagyobb tért hóditó gélfiltrációs eljárásokat alkalmazva e hátrányok kiküszöbölhetők, és lehetővé válik nagyságrendekkel nagyobb mennyiségü - néhány ml - anyag futtatása is. A jódozott aminosavakat elválasztás előtt a szérumokból nem kell elválasztani. Megelőző vizsgálataink-ban[1,2] foglalkoztunk a jódtirozinok /MIT és DIT/, valamint a jódtironinok/T_3

és Tx/ gélfiltrációs szétválasztásának kérdéseivel. Jelen vizsgálataink célja mind a négy jódozott aminosav egyidejü szétválasztása és százalékos eloszlásának meghatározása volt. E célra - korábbi eredményeink alapján - célszerünek látszott a következő eljárás: 1,5x35 cm méretü Sephadex G-25 fine oszlopon, először piridin-ecetsav-viz pufferrel elválasztjuk a jódtirozinokat, majd az eluciót 0,01 N NaOH oldattal tovább folytatjuk, és leoldjuk a jódtironinokat.

Kisérleteinkben először modelleken próbáltuk ki az eljárást, majd ellenőriztük a módszer megbizhatóságát, és megkiséreltük gyakorlati alkalmazását is.

METODIKA ÉS KISÉRLETI EREDMÉNYEK

Anyagok és eszközök

Sephadex G-25 fine dextrangél /Pharmacia, Uppsala gyártmány/
^{125}I-monojódtirozin /Amersham Radiochemical Centre gyártmány/
^{125}I-dijódtirozin / " " " " /
^{125}I-trijódtironin / " " " " /
^{125}I-tiroxin / " " " " /
Piridin, p.a.
Papain, /Reanal gyártmány
Cisztein, /Reanal gyártmány, 0,1 M. oldat/
0,01 N NaOH
2 N HCl,
0,1 M EDTA-oldat
"Fractiomat" automatikus frakciószedő kollektor, /Labor MIM gyártmány/
GOM NK-108 automatikus energiaszelektiv számláló.

Puffer

A jódtirozinokat piridin-ecetsav-viz pufferrel eluáljuk. 45 ml piridint, 11,5 ml cc. ecetsavat desztillált vizzel 2 literre töltünk, majd a szükséges pH értéket /pH 5,6/ beállitjuk. A jódtironinokat 0,01 N NaOH-val eluáljuk.

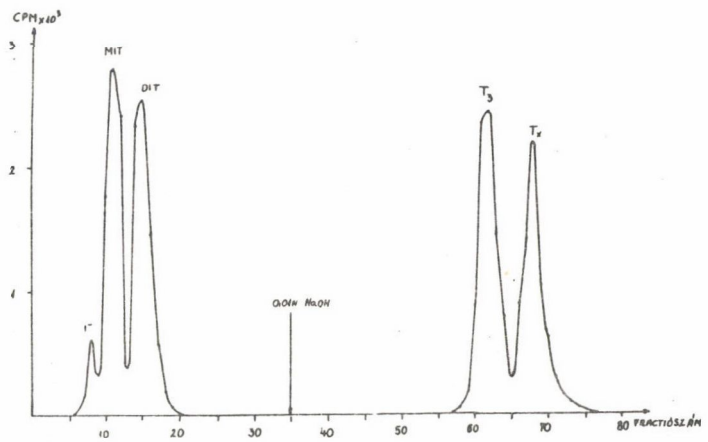
A gélfiltrációs oszlop készitése

A Sephadex G-25 dextrangélt piridin-ecetsav-viz pufferben szuszpendáljuk. Háromszor dekantáljuk, majd a gélágyat 24 órai állás után a szuszpenzióból készitjük el.

Jódtirozinok és jódtironinok szétválasztása

A jelzett monojódtirozinból, dijódtirozinból, trijódtironinból és

tiroxinból 1:1:1:1 arányu keverékeket készitettünk, amelynek fajlagos aktivitása 0,02 µCi/ml volt. Ebből 5 ml-t futtattunk a gélágyon, 5 ml-t pedig standardnak félretettünk. Miután a szétválasztásra szánt oldat a gélágyba beszivódott, 5 ml piridin-ecetsav-viz pufferrel utánamossuk. A mosófolyadékot hagyjuk lecsepegni. Ezután megkezdjük az eluálást. A leoldást a piridin-ecetsav-viz pufferrel végezzük, és 30 5 ml-es frakciót gyüjtünk. Ezután az eluálást 0,01 N NaOH oldattal folytatjuk, és ujabb 70 5 ml-es frakciót szedünk. A frakciók aktivitását üreges kistályban, energiaszelektiv számlálóval mérjük. A mérések öt csucsból álló kromatogramot szolgáltatnak, ahol az első csucs a szervetlen jódot, a második a monojódtirozint, a harmadik a dijódtirozint, a negyedik a trijódtironint, az ötödik a tiroxint tartalmazza. Mindezeket az 1. ábra szemlélteti.



1. ábra

Jelzett jódtirosinok és jódtironinok keverékének szétválasztása
Elutiós sebesség: 50 ml/óra

A számszerü eredmények az 1. táblázat felső A részében láthatók. A visszanyerés megfelelő volt; a felvitt és eluált jódozott aminosavak eloszlása a kisérleti hibahatáron belül azonos.

1. táblázat

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok keverékének szétválasztása 1,5x35 cm-es oszlopokon

A Szérummal való inkubálás nélkül

B Szérummal inkubálva

	Adat	Átlag %	Tartomány	$S_{\bar{x}}$
A	Visszanyerés	100,50	96,32-104,82	± 0,07
	I^-	3,10	0-6,84	± 0,03
	Felvitt és eluált ^{125}I-MIT különbsége	2,13	0,11-4,55	± 0,04
	Felvitt és eluált ^{125}I-DIT különbsége	1,86	0,01-3,62	± 0,03
	Felvitt és eluált ^{125}I-T_3 különbsége	1,61	0-3,90	± 0,03
	Felvitt és eluált ^{125}I-Tx különbsége	2,80	0-4,54	± 0,03
B	Visszanyerés	101,34	97,61-104,85	± 0,05
	PBI	1,57	0-3,59	± 0,28
	I^-	2,79	0-6,63	± 1,07
	Felvitt és eluált szervetlen jód különbsége	1,77	0,50-3,86	± 0,41
	Felvitt és eluált ^{125}I-MIT különbsége	1,99	0,22-4,65	± 0,35
	Felvitt és eluált ^{125}I-DIT különbsége	1,88	0,14-3,06	± 0,25
	Felvitt és eluált ^{125}I-T_3 különbsége	1,94	0,30-3,75	± 0,30
	Felvitt és eluált ^{125}I-Tx különbsége	2,43	0,56-4,19	± 0,27

Felvitt anyagmennyiség: 5 ml

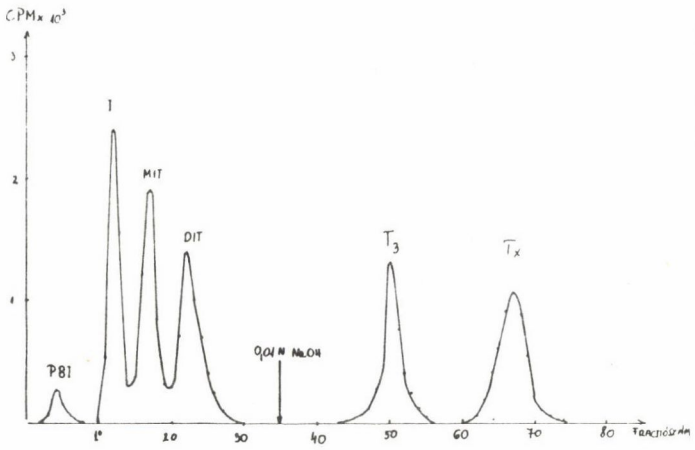
Kisérletek száma: A: 25, B: 25

A szérum jelzett jódtirozin- és jódtironin-tartalmának meghatározása

10 ml szérumhoz a jelzett, jódozott aminosavak különféle arányu /1:1:1:1; 1:1:1:3; 1:2:5:30/ keverékét adtuk, majd egy óra hosszat 37°C-on inkubáltuk. E vegyületeket szétválasztás előtt a szérumfehérjékkel való kötésből felszabaditjuk, amit Lissitzky és munkatársai[3] nyomán a következő módon végzünk.

A keveréket 2 N HCl-val megsavanyitjuk, hozzáadunk 25 mg papaint, 0,65 ml 0,1 M cisztein és 0,65 ml 0,1 M EDTA-oldatot. 24 óra hosszat 37 ^{o}C-on inkubáljuk. Másnap a piridin-ecetsav-viz pufferrel 20 ml-re feltöltjük, és pár csepp 30 %-os NaOH oldatot adunk hozzá, a kocsonyás csapadék feloldása céljából. Az igy kapott tiszta oldat kémhatását ellenőrizzük; ha lugos, 2 N HCl-val semlegesitjük. A kiindulási szérumhoz annyi izotópot adunk, hogy a fajlagos aktivitás a végtérfogatra számitva 0,02 µCi/ml legyen. A szétválasztást, eluálást és mérést az előző pont szerint végezzük.

A kapott kromatogramot, amely hat csucsot tartalmaz, a 2. ábra szemlélteti. Az első csucs azt a fehérjéhez kötött jódot jelenti, amit a papain már nem tudott felszabaditani, a második a szervetlen jódot, a harmadik a monojódtirozint, a negyedik a dijódtirozint, az ötödik a trijódtironint, a hatodik a tiroxint. A számszerü eredmények az 1. táblázat B részében láthatók. A visszanyerés megfelelő, a felvitt és eluált jódozott aminosavak eloszlása is a kisérleti hibahatáron belül van.



2. ábra

Szérummal inkubált jelzett jódtirozinok és jódtironinok keverékének szétválasztása

Elucios sebesség: 50 ml/óra

A zavaró hatások vizsgálata

A jelzett jódozott aminosavak szétválasztását a következő tényezők befolyásolhatják:

a/ a jelenlevő szervetlen jód;
b/ a jódtirozinok és jódtironinok kölcsönösen zavarhatják egymás szétválasztását;
c/ az egyes aminosavak dejodálódhatnak, és ezáltal kapunk hamis eredményeket.

Az a/ és b/ kérdéssel előző dolgozatainkban[1,2] részletesen foglalkoztunk. Megállapitottuk, hogy a jelenlevő szervetlen jód a jelzett jódozott aminosavak elválasztását nem zavarja. Az egyes aminosavak egymás szétválasztását nem befolyásolják. Ezt a megállapitást az 1. táblázat B részében látható eredményeink megerősitik. Ezen adatok értelmében a felvitt jódozott aminosavakat az eredetivel megegyező arányban visszanyertük, és az izotópkeverékhez adott, ismert mennyiségü szervetlen radioaktiv jódot az eredetivel megegyező mennyiségben eluáltuk. Részletesen megvizsgáltuk a dejodálódás kérdését. Gélfiltrációs módszerrel meghatároztuk a szóban forgó jelzett jódtiro-

zinok és jódtironinok szervetlenjód-tartalmát papainos kezelés előtt és után.

E kisérletek eredményét a 2. táblázat szemlélteti. A táblázat A részéből látható, hogy a szervetlenjód-tartalom a papainos kezelés után kis mértékben nő, azonban még igy sem éri el az 5 %-ot. Mindezt megerősiti további öt kisérlet átlageredménye is, mely a táblázat B részében látható. Ez esetben ugyanazon jódozott aminosavak szervetlenjód-tartalmát láthatjuk, papainos kezelés előtt és után.

2. táblázat

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok szervetlenjód-tartalmának összehasonlitása papainos kezelés nélkül és papainnal kezelve

Vegyület	A				B	
	Átlag	Tartomány	$S_{\bar{x}}$	Különbség	Átlag	Különbség
^{125}I-MIT	1,44	0,91-3,25	0,27		1,05	
^{125}I-MIT papainnal kezelve	2,43	1,31-3,54	1,11	2,4	1,30	± 0,95
^{125}I-DIT	2,41	1,16-4,29	0,26		1,26	
^{125}I-DIT papainnal kezelve	3,37	1,37-5,66	0,44	0,04	3,14	± 1,88
^{125}I-T_3	3,97	2,08-5,82	0,18		4,50	
^{125}I-T_3 papainnal kezelve	3,93	3,53-4,30	0,08	0,20	4,13	± 0,37
^{125}I-Tx	3,22	1,46-4,11	0,45		5,08	
^{125}I-Tx papainnal kezelve	4,12	3,00-5,25	0,26	0,91	4,82	± 1,00

Felvitt anyagmennyiség: 5 ml
Kisérletek száma: A: 25, B: 5

Külön kell emlitenünk a szérumfehérjék bontására használt papain mennyiséget. Legcélszerübb, ha 10 ml kiindulási szérumhoz 20-30 mg papaint használunk. Ennél kisebb mennyiségü enzim nem bontja el tökéletesen a szérumfehérjéket, viszont nagyobb mennyiség már megtámadja és dejodálja a monojódtirozint.

A gélfiltrációval kapott eredmények ellenőrzése papirkromatográfiás módszerrel

A futtatást Roche[4], valamint Kertai és munkatársai[5] nyomán n-butanol és 2 N NH_4OH tartalmu közegben végeztük. A szétválasztásra a piridin-ecetsav-viz

pufferrel jelzett jódtirozinokból és jódtironinokból keveréket készitettünk, amelynek fajlagos aktivitása 20 µCi/ml volt. Ezt a keveréket használtuk a papirkromatográfiás elválasztáshoz. A gélfiltrációs elválasztás céljára tovább higitottuk, hogy fajlagos aktivitása 0,02 µCi/ml legyen. Mérési eredményeinket a 3. táblázatban láthatjuk.

A két módszerrel kapott eredmények között lényeges eltérés nincs.

3. táblázat

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok keverékének szétválasztási eredményei, gélfiltrációs és papirkromatográfiás módszerrel

MIT:DIT:T_3:Tx arány	Vegyület	Felvitt %	Papirkromatográfiával, %	Gélfiltrációval %
1:1:1:1	^{125}I-MIT	25,00	21,45	23,95
	^{125}I-DIT	25,00	26,83	23,34
	^{125}I-T_3	25,00	23,75	26,45
	^{125}I-Tx	25,00	26,97	26,26
1:1:1:3	^{125}I-MIT	16,66	15,60	18,20
	^{125}I-DIT	16,66	18,45	16,80
	^{125}I-T_3	16,66	12,71	13,20
	^{125}I-Tx	50,00	53,24	51,70
1:2:5:30	^{125}I-MIT	2,63	2,50	2,80
	^{125}I-DIT	5,26	5,10	6,02
	^{125}I-T_3	13,15	12,28	13,01
	^{125}I-Tx	78,95	80,12	78,17

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok szétválasztása és százalékos eloszlásának meghatározása in vivo

Megkíséreltük az ismertetett módszer gyakorlati alkalmazását, ezért néhány hipertireózisos beteg szérumában meghatároztuk a jelenlevő jódtirozinok és jódtironinok százalékos eloszlását radiojódterápia után.

A betegektől a ^{131}I izotóp beadása után 24 vagy 48 órával vett vért centrifugáltuk. A szérumból 10 ml-t 2 N HCl-val megsavanyitottunk, hozzáadtunk 25 mg papaint, 0,65 ml 0,1 M cisztein és 0,65 ml 0,1 M EDTA-oldatot, és 24 óra hosszat 37 °C-on inkubáltuk. Másnap piridin-ecetsav-viz pufferrel kiegészitettük 20 ml-re. A keletkezett csapadékot pár csepp 30 %-os NaOH oldattal fel-

oldottuk, majd az elegyet 2 N HCl-val semlegesitettük. A futtatást és a mérést az ismert módon végeztük. A kapott kromatogram azonos jellegü volt a 2. ábrán bemutatott görbével; hat csucsot tartalmazott. A számszerü eredmények a 4. táblázatban láthatók.

4. táblázat

Jelzett jódtirozinok és jódtironinok in vivo szétválasztásának és meghatározásának eredményei

Sorszám	Dózis mCi	Visszanyerés %	PBI %	I^- %	MIT %	DIT %	T_3 %	Tx %
1	3,6	97,59	2,24	9,79	1,43	1,49	17,63	63,87
2	5,2	95,28	3,41	29,75	1,46	-	5,86	59,82
3	3,9	104,50	1,68	4,24	0,62	0,83	5,62	86,15
4	8,4	98,36	4,63	4,81	0,47	0,55	18,58	70,04
5	5,5	103,60	6,19	20,00	1,30	1,04	-	71,46
6	9,0	99,91	5,23	5,69	1,13	0,96	17,59	62,67
7	3,6	100,62	2,75	9,86	0,67	0,57	12,97	68,88
8	4,2	95,38	1,23	9,36	1,96	-	5,44	80,43
9	2,0	102,47	3,37	3,78	1,16	0,58	18,64	67,24
10	5,0	95,15	2,55	3,53	0,77	1,07	7,38	84,70
11	5,0	102,84	2,37	3,80	0,44	0,69	3,48	88,93
12	8,0	102,81	7,29	43,20	0,34	0,39	7,59	39,72
Átlag		99,86	3,50	12,32	0,98	0,68	10,07	70,30
Tartomány		99,15--104,50	1,23--7,29	3,53--43,20	0,34--1,96	0--1,96	0--18,64	39,72--88,93
$S_{\bar{x}}$		± 1,00	± 0,55	± 0,37	±0,15	±0,13	± 1,81	± 0,40

MEGBESZÉLÉS

A szérumban jelenlevő jelzett jódtirozinok és jódtironinok szétválasztására először a radioaktiv papir-, majd vékonyréteg-kromatográfiát alkalmazták. Ezen eljárásoknak több hátránya volt, ezért több kutató, mint pl. Blanquet és munkatársai[6,7], valamint Pitt-Rivers és Sacks[8,9], megkisérelte a jódozott aminosavak ioncserélő gyantákon történő elválasztását. E módszerek azonban nem tették lehetővé mind a négy aminosav egyidejü szétválasztását, és sok esetben a visszanyerés sem volt megfelelő. Lissitzky és munkatársai[3,10], továbbá Mougey és Mason[11], Müller és Spitzy[12,13] stb. foglalkozott a jódozott aminosavak gélfiltrációs szétválasztásának kérdésével. Először Osborn és Simpson[14] ismertetett olyan eljárást, amelyet mind a négy jódozott aminosavat egyidejüleg szétválasztotta. Eljárásuk hibája azonban, hogy a jódtironinok

szétválasztása nem tökéletes.

Célunk a jelzett jódtirozinok és jódtironinok egyidejü elválasztása volt, és az alábbi kérdésekre kerestünk választ:

1. milyen gélt alkalmazzunk és milyen méretü oszlopot?
2. Mi legyen az eluáló puffer összetétele és pH-ja?
3. Milyen mennyiségü anyagot futtathatunk?
4. Melyek a szétválasztást zavaró tényezők, és hogyan lehet őket kiküszöbölni?
5. Végül ellenőrizni kellett a kapott értékek helyességét.

Megelőző kisérleteink alapján[1,2], amelyekben külön-külön,részletesen foglalkoztunk a jódtirozinok és jódtironinok szétválasztásának kérdéseivel, az elválasztást 1,5x35 cm méretü Sephadex G-25 fine oszlopon végeztük. A futtatott mennyiség 5 ml volt. A két módszert egyesitve, a jódtirozinok szétválasztását piridin-ecetsav-viz pufferrel /pH=5,6/, a T_3 és Tx elucióját 0,01 N NaOH oldattal végeztük. Modellkisérleteinkben e jódozott aminosavak keverékét először szérum jelenléte nélkül, majd szérummal inkubálva szétválasztottuk. Az elválasztás egymástól élesen elkülönülő csucsokat adott.

A jelenlevő szervetlen jód a szétválasztást nem zavarta, és az aminosavak egymás elválasztását nem befolyásolták. A dejodolás veszélye a szérumfehérjék enzimatikus lebontása következtében a minimumra csökkent. Csupán egyetlen tényezőnek lehet zavaró hatása: a jódozott aminosavakat a szérumfehérjékkel való kötésből felszabaditó papainnak. Ezt azonban, a szükséges papain mennyiségét ismerve, könnyen kiküszöbölhetjük. Megfelelő visszanyerés mellett a felvitt, jódozott aminosavak azonos eloszlásban eluálódtak. Ellenőrzés céljából jódtirozinok és jódtironinok keverékét /szérummal való inkubálás nélkül/ papirkromatográfiás uton és gélfiltrációval is szétválasztottuk. Az eredmények a kisérleti hibahatáron belül megegyeztek.

A módszernek az az előnye, hogy a futtatást megelőző körülményes szétválasztási eljárás nélkül egyszerüen és könnyen végrehajtható, és megbizható eredményeket szolgáltat. A gélfiltráció és az azt követő mérés azonban meglehetősen időigényes müvelet, melyen a munka automatizálásával lehet segiteni.

Meghatároztuk néhány hipertireózisos beteg szérumában a jódozott aminosavak eloszlását radiojód-terápia után. Azt tapasztaltuk, hogy a jódozott aminosavak zömét a tiroxin adja. Mellette kisebb mennyiségü trijódtironin és nagyon kevés monojód-,illetve dijódtironin található. Ezen megfigyelésünk azon kutatók adataival van összhangban[15,16,17], akik más módszerekkel /papirkromatográfia, ioncserélő gyanta/ humán szérumban csak kis mennyiségü jódtirozint találtak. Meg kell jegyeznünk, hogy ezzel az eljárással - megfelelő enzimatikus /pl. tripszines/ emésztést alkalmazva - módunk van a pajzsmirigyben jelenlevő jódozott aminosavak meghatározására, igy állatkisérletekben jól alkalmazható.

IRODALOM

1. *G. Gyertyánfy, J. Földes, É. Kollin*: Kiséri. Orvostud. 23, /1971/ 574
2. *G. Gyertyánfy, J. Földes, É. Kollin*: Kiséri. Orvostud. előkészületben
3. *S. Lissitzky, J. Bismuth,*: Clin. Chim. Acta, 8, /1963/ 269
4. *J. Roche, R. Michel, W. Wolff, J. Nunez*: Biochim. Biophys. Acta, 19, /1965/ 3o8
5. *I.R. Balogh, P. Kertai*: Orvosi Hetilap, 1o4, /1963/ 154
6. *P. Blanquet, G. Meyniel, J. Mounier, R. Stoll, R. Maraud*: A. Endocr. Paris, 18, 864
7. *P. Blanquet, G. Meynier, J. Mounier, C.A. Tobias*: Bull. Soc. Chim. Biol., Paris, 39, 419
8. *V.A. Galton, R. Pitt-Rivers*: Biochem. J., 72, /1959/ 31o
9. *R. Pitt-Rivers, B.I. Sacks*: Biochem. J., 82, /1962/ 111
1o. *S. Lissitzky, J. Bismuth, M. Rolland*: Clin. Chim. Acta, 7, /1962/ 183
11. *E. Mougey, J.W. Mason*: Anal. Biochem., 6, /1963/ 223
12. *E. Makovetz, K. Müller, H. Spitzy*: Microchem. J., 1o, /1966/ 194
13. *K. Müller*: Clin. Chim. Acta, 17, /1967/ 21
14. *R.N. Osborn, T.H. Simpson*: J. Chromatogr. 34, /1968/ 11o
15. *V.J. Pileggi, H.G. Segal, O.J. Golub*: J. Clin. Endocr., 24, /1964/ 273
16. *M.L. Wellby, M.W. O'Halloran*: Biochem. J., 112, /1969/ 543
17. *D. Emrich, N. Uhl*: Acta Endocr., 55, /1967/ 573

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1963. 3. szám.

A PMB-6 TIP, BETATRON SUGÁRZÁSÁNAK MÉRÉSE

Benkő L.
MTA Izotóp Intézete, Budapest

A betatron működésének fizikai alapjai. A betatron fékezési sugárzása dózis-intenzitás-terének meghatározása. Az MTA Izotóp Intézete betatronja környezetének dózistérképe. A személyi dózismérők alkalmazhatósága.

Измерение излучения бетатрона типа ПМБ-6
Бенкё, Л.

Физические основы работы бетатрона. Определение распределения мощности доз тормозного излучения. Распределение мощности доз в окружности бетатрона Института изотопов ВАН. Применимость индивидуальных дозиметров.

Measuring of the Radiation Field of a PMB-6 Type Betatron
Benkő, L.

Physical principles of betatron operation. Determination of dose rate distribution of the bremsstrahlung. Dose rate field in the environment of the betatron of the Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences. Applicability of personal dosimeters.

BEVEZETÉS

A különféle részecskegyorsitók, amelyek szinte kizárólag a magfizikai kutatások ösztönző hatására születtek, az utóbbi 10-15 évben a tudomány és technika számos területén is egyre inkább tért hóditanak[1]. Ebből a szempontból a legjellemzőbb gyorsitó a betatron, amely több MeV energiára felgyorsitott elektronok, illetve lefékezésük során keltett nagyenergiáju fotonsugárzás előállitására szolgál. Hogy csak a két legfontosabb alkalmazási lehetőségét emlitsük, a betatron

a/ mint nagyenergiáju foton-sugárforrás jelentősen bőviti az ipari roncsolásmentes anyagvizsgálat alkalmazási körét, továbbá

b/ mint nagyenergiáju elektron-sugárforrás hatékony sugárterápiai eszköz az orvostudomány kezében[2].

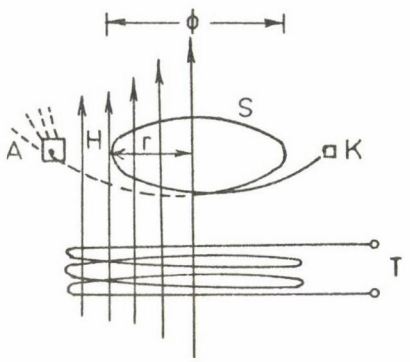
Az Országos Onkológiai Intézet 25 MeV-es betatronján[2] kivül ma már további, elsősorban radiográfiai anyagvizsgálatokra alkalmas betatronok is működnek az országban. E szovjet gyártmányu, PMB-6 tipusszámu, hordozható betatronok maximális energiája 6 MeV. A PMB-6 tipusu betatronról és radiográfiai

alkalmazásának lehetőségeiről a /3/közlemény ad összefoglalást.

Az alábbiakban áttekintjük a betatron müködésének és sugárzásának fizikai alapelveit. Mérési módszert ismertetünk a betatron fékezési sugárzása dózisintenzitásának meghatározására. Az MTA Izotóp Intézetének tulajdonában lévő, PMB-6 tipusu betatron sugárzási terében végzett mérések során indirekt módon igazoltuk a nagyenergiáju fékezési sugárzás elméleti energiaeloszlását. Tekintettel az ipari alkalmazások sugárvédelmi szempontjaira, felvettük a betatron környezetének dózistérképét, és megvizsgáltuk a személyi dózismérők alkalmazhatóságát.

A SUGÁRZÁS KELETKEZÉSE ÉS TERMÉSZETE

A betatron elektromágneses indukción alapuló ciklikus elektrongyorsitó. Maga az alapgondolat igen egyszerü, és már az 1920-as években felvetődött /1. ábra/. Ha egy transzformátor szekunder tekercsét kör alaku vákuumcsővel /S/ helyettesitjük, és a csőben a K katódból kilépően elektronáramot inditunk, akkor a H változó mágneses tér által keltett elektromos tér az elektronokat körpályán több MeV energiára gyorsithatja. Ha a gyors elektronokat az A céltárgyra irányitják, nagyenergiáju fékezési sugárzás keletkezik.



1. ábra

A betatron elve

A gondolat megvalósitása ezután még csaknem két évtizedet váratott magára. Időközben a ciklotron feltalálásával lehetővé vált a protonok és nehéz részecskék gyorsitása a MeV-es energiatartományban. Elektrongyorsitásra azonban a ciklotron alkalmatlan, mivel a realtivisztikus tömegnövekedés miatt kb. 100 keV esetén is számottevően csökken az elektronok körmozgásának frekvenciája a duánsok belsejében, ugyanakkor a ciklotronfrekvencia állandó.

Sokáig leküzdhetetlennek tünő elvi és konstrukciós nehézségek okozták, hogy az első használható, 2,3 MeV-es betatron - a fenti sürgető körülmények ellenére is - csak 1941-ben készült el /Kerst/.

A betatron müködési elvének pontosabb megértése céljából a következőkben a két legfőbb fizikai probléma megoldási módját vázoljuk:

1. meg kell határozni annak feltételét /az un. betatronfeltételt/, hogy a vákuumcsőben keringő elektronok - növekvő energia esetén is - azonos sugaru, egyensulyi körpályán maradjanak;

2. egyetlen gyorsitási periódus alatt az elektronok több százezer fordulatot tesznek. Ezért mind radiális, mind tengelyirányban rendkivül hatékony fókuszálást kell biztositani.

Elektrongyorsitás

Vizsgáljuk az elektron mozgását $\underline{B}_o$ tengelyszimmetrikus mágneses térben, a mágneses tér tengelyére merőleges sikban. Ebben a sikban a $\underline{v}_o$ sebességgel mozgó q töltésre ható erő a Faraday-törvény értelmében:

$$\underline{F} = q\underline{v}_o \times \underline{B}_o ,$$

tehát az elektron körpályán mozog.

A Faraday-törvényből kiindulva, a mozgás feltétele állandó r sugaru körpályán:

$$\Delta B_r = \frac{\Delta p}{qr} , \qquad /1/$$

ahol ΔB_r a mágneses tér változása az r sugaru pályán, és Δp az elektron impulzusváltozása.

A gyorsitás feltételét /ugyancsak az r sugaru pályán/ a II. Maxwell-egyenletből kaphatjuk meg. Az eredmény:

$$\Delta \overline{B} = \frac{2\,\Delta p}{qr} , \qquad /2/$$

ahol $\Delta \overline{B}$ az átlagos mágneses térerősség változása a kör belsejében.

/1/ és /2/ összehasonlitásával:

$$\Delta \overline{B} = 2\,\Delta B_r . \qquad /3/$$

A /3/ összefüggés a Wideröe által meghatározott un. "2:1 feltétel" vagy betatronfeltétel: ha a pálya belsejében a mágneses tér kétszer olyan gyorsan növekszik, mint a pálya mentén, akkor az elektron a teljes gyorsitási periódus alatt állandó sugaru egyensulyi körpályán kering, függetlenül attól, hogy mekkora a sebessége, illetve a relativisztikus tömegnövekedése.

A gyorsitás /illetve az elektronenergia/ felső határát egyéb tényezők szabják meg. Egyrészt konstrukciós nehézségek lépnek fel /a 300 MeV-es betatron mágnesrendszerének sulya mintegy 1000 tonna/, másrészt a közel fénysebességgel keringő elektronoknak számottevő sugárzási veszteségük van. /Pl. a 300 MeV-es elektronok sebessége 0,03 %-ra megközeliti a fénysebességet, tömegük a nyugalmi tömeg 600-szorosa./

A gyors elektronok megfelelő intenzitásu nyalábja csak akkor állitható elő, ha az összes elektronok az egyensulyi körpályán keringenek. A betatron vákuumcsövébe "ferdén" belépő, illetve a maradék gázmolekulák által eltéritett elektronoknak automatikusan vissza kell jutniuk az egyensulyi körpályára. A ciklotrontól eltérően nemcsak tengelyirányu /függőleges/, hanem rendkivül hatékony radikális fókuszálásra is szükség van.

A fókuszálás a mágneses tér, illetve a mágnespólusok célszerü kialakitásával biztositható. A mágneses tér meredekségének jellemzésére az

$$n = \frac{dB}{B} : \frac{dr}{r}$$

un. térindex alkalmazható. Kimutatható, hogy a tengelyirányu fókuszálás $n < 0$, a radiális fókuszálás pedig $n > -1$ térindexszel biztositható.

Az elektronpálya tehát akkor stabil, ha $-1 < n < o$. A mágneses teret ciklotron esetén $n \sim 0$, betatron esetén $n = -/0,6...0,7/$ térindexnek megfelelően szokták kialakitani. A betatronnál ez azt jelenti, hogy a tengelyirányu fókuszálás hatékonyabb, mint a sugáriránynyu: a vákuumcső keresztmetszete nem kör, hanem vizszintesen nyujtott ellipszis, ezáltal tovább csökkenthető a mágnespólusok közti légrés, és a berendezés sulyának változatlanul tartása mellett növelhető a mágneses térerősség.

Fékezési sugárzás

A több MeV energiára gyorsitott elektronoknak céltárgyba ütközése nyomán a betatronból fékezési sugárzás lép ki. A betatron gyakorlati alkalmazása és az ezzel kapcsolatos sugárvédelmi mérések egyaránt szükségessé teszik a fékezési sugárzás keletkezésének és természetének rövid áttekintését.

A céltárgy atomjainak a terén áthaladó elektron sebességvektora megváltozik. Az eltérités gyorsulással jár együtt, ezért az elektron sugárzást bocsát ki. Kvantummechanikai megfogalmazásban a kezdetben E_o összenergiáju elektron valamely más, E energiáju állapotba megy át, és közben bizonyos valószinüséggel hν energiáju foton emittálódik. A fékezési sugárzás folytonos, maximális energiáját a

$$h\nu_o = E_o - mc^2$$

összefüggés határozza meg /mc^2 = 0,51 MeV az elektron nyugalmi energiája/.

A kvantumelektrodinamika Bethe-Heitler-elmélete alapján Schiff meghatározta a fékezési sugárzás előre irányuló nyalábjának intenzitáseloszlását a fotonenergia függvényében, figyelembe véve az elektronok többszörös szóródását a céltárgyon[4,5]. Az intenzitással arányos mennyiségként az alábbi kifejezést kapta:

$$\Gamma = \frac{2(1-\varepsilon)(\ln\alpha - 1)}{2(1-\varepsilon)(\ln\alpha - 1) + \varepsilon^2(\ln\alpha - 0,5)} , \qquad /4/$$

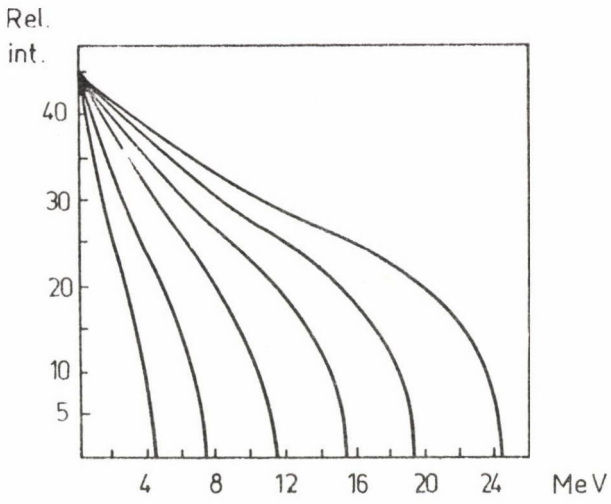
ahol

$$\alpha = \frac{\alpha_1\alpha_2}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2\ 1/2} ; \quad \alpha_1 = \frac{2E_o}{mc^2}\frac{E_o - h\nu}{h\nu}; \quad \alpha_2 = \frac{111}{Z^{1/3}}; \quad \varepsilon = \frac{h\nu}{E_o} .$$

A (4) összefüggés közelitő érvényességét kisérletileg igazolták,

betatronban előállitott 19,5 MeV-es elektronok által Pt-ban keltett γ-sugarak energiaspektrumának meghatározásával[6].

A /4/ összefüggés alapján számitott relativ intenzitásokat a 2. ábrán tüntettük fel, különféle E_o értékek esetén.



2. ábra

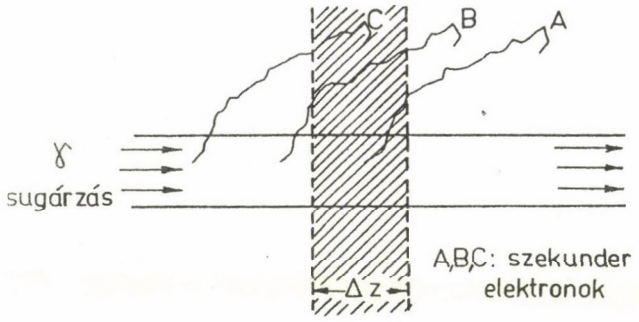
A fékezési sugárzás relativ intenzitáseloszlása /[6] alapján/

A PMB-6 TIP. BETATRON SUGÁRZÁSI TERÉNEK DOZIMETRIÁJA

A 2. ábrán látható, hogy a fékezési sugárzás intenzitása közel egyenletes eloszlásu az $E_o - mc^2$ maximális energiáig. Ezért a dózisintenzitás közelitő pontosságu mérése - a nagyenergiáju γ-sugárzás miatt - a PMB-6 tipusu betatron esetében is különféle problémákat vet fel. Ezeket a következőkben foglaljuk össze.

Mint ismeretes, a γ-sugárzás ionizáló képességének a mértéke a tér adott pontjában a besugárzási dózis /röntgen egységekben kifejezve/. A röntgen definiciója szerint a besugárzási dózis meghatározásához a 0,001293 g levegőben keletkező szekunder elektronok összes ionizációját kell mérni. A méréskor azonban nem tudunk különbséget tenni a szóban forgó 1 cm^3-ben, illetve a környező térben keletkezett /és a kiszemelt 1 cm^3 térfogatba jutó/ szekunder elektronok között. Ezt a - méréstechnikai nehézséget okozó - körülményt szekunderelektron-egyensuly esetén lehet figyelmen kivül hagyni. Ez az egyensuly durván azt jelenti, hogy a mérőtérfogatból kilépő minden egyes elektron helyébe ugyanakkora energiáju másik elektron lép be. Ha tehát a 3. ábrán látható Δz levegőréteg a sugárforrástól nagyobb távolságra van, mint a szekunder elektronok hatótávolsága, akkor a benne áthaladó szekunder elektronok összes ionizációja megegyezik a Δz-ben keltett elektronok összes ionizációjával. A besugárzási dózis tehát a Δz-ben mért ionizációból meghatározható /szabadlevegős ionizációs kamra/. 400 keV-nél nagyobb γ-energiák esetén - a szekunder elektronok nagy hatótávolsága miatt - a besugárzási dózis mérésére általában levegőekvivalens falu ionizációs kamrák használatosak. Ennél a kamratipusnál az elektronegyensulyt az biztositja, hogy a levegőénél jóval nagyobb sürüségü, és a levegőével közel azonos tömegfékező képességü falanyag vastagsága legalább akkora, mint a maximális energiáju elektronok hatótávolsága[7].

Fizikailag a következőkről van szó. Az elektronok fajlagos energiavesztesége lényegében az anyag elektronsürüségével arányos. A tömegfékező képesség pedig, definició szerint



3. ábra

Az elektronegyensuly elve

$$S = \rho^{-1}(-dE/dx),$$

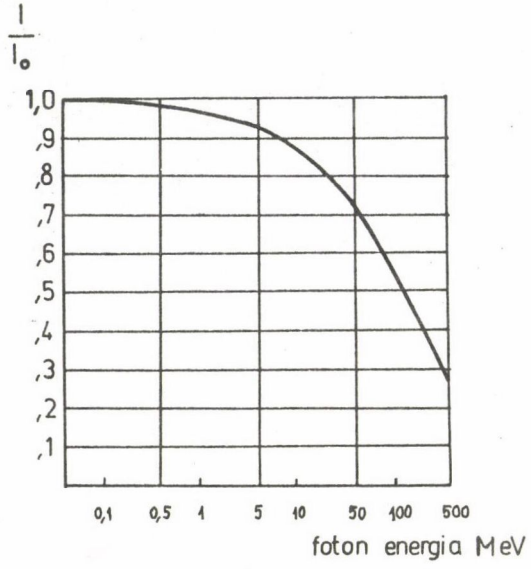
független a sürüségtől; szemléletes jelentése: energiaveszteség 1 g anyagban. A kamrafal levegőekvivalens anyagára

$$\frac{S_{fal}}{S_{levegő}} = 1.$$

Mivel az előzők értelmében a fal elektronsürüségével a fal 1 cm^3-ében keltett szekunder elektronok száma és fajlagos energiavesztesége egyenesen, a szekunder elektronok hatótávolsága pedig forditva arányos, ezért a levegőüregben az ionizáció változatlan, független a kamrafal sürüségétől.

A besugárzási dózisnak a röntgen definiciója alapján való mérésekor tehát elektronegyensulyt kell teremteni, vagyis biztositani kell a szekunder elektronok "egyenletes" keletkezését abban a falvastagság-tartományban, amelyből az elektronok elérhetik az üreget. Ez magában foglalja azt a követelményt is, hogy a primer sugárzás intenzitása is állandó kell hogy legyen a szekunder elektronok maximális hatótávolságával azonos vastagságu falrészben.

A 4. ábrán a fotonok I/I_o intenzitásaránya látható a fotonenergia függvényében, olyan vastagságu levegőrétegen való abszorpció esetében, amely a fotonokéval azonos energiáju elektronok hatótávolságával egyezik meg[5]. Az elektronegyensuly feltétele, hogy ez az arány 1 legyen. Látható, hogy az egyensulyi közelités növekvő fotonenergiával romlik. A röntgen fogalma és mérése tehát növekvő fotonenergiával egyre inkább értelmét veszti.



4. ábra

Elektronegyensuly esetén $\frac{I}{I_o} = 1$

A betatron fékezési sugárzásának dozimetriájára általában azok a müszerek alkalmazhatók, amelyek közvetlenül a dózis definiciója alapján müködnek /ionizációs kamrák/. A GM-csöves sugárzásmérők nem jöhetnek számitásba, mivel a betatron impulzusüzemben müködik /s-onként 50 fotoncsomag/, és a pillanatnyi dózisintenzitás rendkivül nagy értékü. A váltakozóáram negyed periódusában lezajló elektrongyorsitást követően a fékezési sugár-

zás impulzusának időtartalma $10^{-5}...10^{-6}$s, s ezért a pillanatnyi és az átlagos dózisintenzitás aránya 10^{4} nagyságrendü. A GM-csöves müszerek az egyes "fotoncsomagokat" számlálják, e csomagok intenzitását azonban nem érzékelik.

A fékezési sugárzás dózisintenzitásának mérését a röntgen eredeti definiciója alapján végeztük, mivel a fentiek alapján

a/ a primer sugárzás folytonos, maximális energiája 6 MeV, s igy a 4. ábra értelmében - az alábbiakban leirt módon - közelitően teljesithető az elektronegyensuly feltétele;

b/ a szekunder elektronok energiaeloszlása - adott energiáju primer foton esetén is - 0-tól a primer foton energiájáig terjedhet, és ebből a szempontból az egyensulyi viszonyok valójában jobbak, mint a 3. ábra esetében;

c/ sugárvédelmi jellegü mérések esetén ±20...30%-os hiba még elfogadhatónak mondható.

A betatron vezérlőegységén beállitott - maximális dózisintenzitásnak megfelelő - üzemi paraméterek:

energia 6 MeV,
intenzitás 20 μA,
rétegáram 130 μA.

A méréseket hármas céllal végeztük.

1. A fékezési sugárzás közvetlen nyalábja R/h-ban kifejezett dózisintenzitásának meghatározása a betatron szimmetriatengelyétől 1 m távolságban /amely egyébként a berendezés egyik specifikációs adata/, illetve a /4/ elméleti összefüggés kisérleti igazolása a nyaláb utjába helyezett különféle abszorbensekkel.

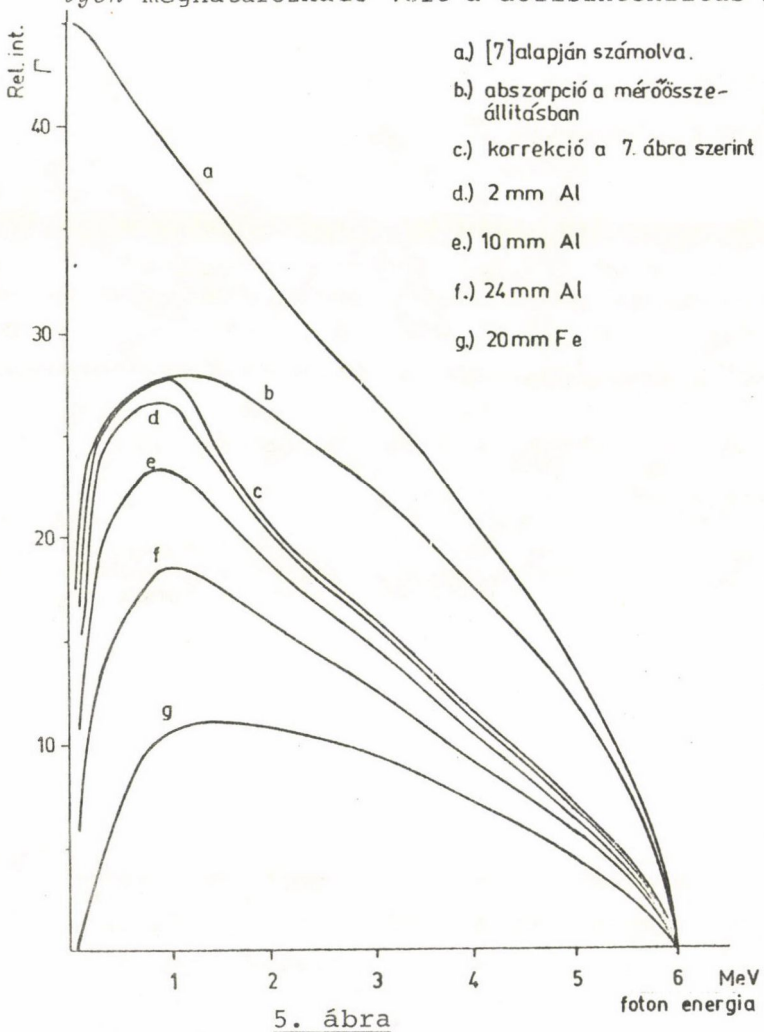
2. A környezeti dózisszintek feltérképezése, a betatronnal végzendő radiográfiás munkák sugárvédelmi előirásainak megállapitása és rögzitése érdekében.

3. Személyi dózismérők alkalmazhatóságának vizsgálata

Dózisintenzitás mérése a nyalábban /1 m távolságban/

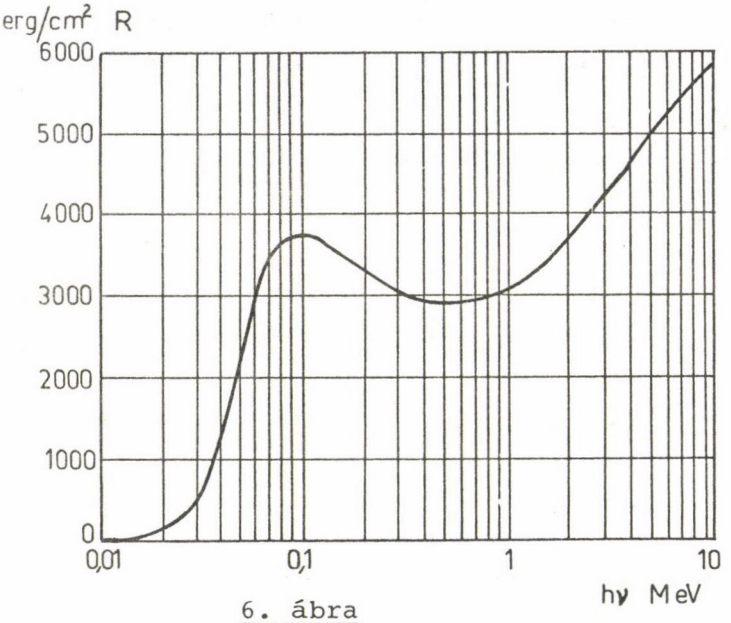
Az 1. cél megvalósitása során a mérésekhez VA-J-18 tipusu dózismérőt és hozzá tartozó VA-K-253 tipusu, 1,5 cm^3 térfogatu ionizációs gömbkamrát használtunk. A maximálisan 6 MeV energiáju szekunder elektronok hatótávolságát figyelembe véve, az előző szakasz meggondolásai értelmében, a kamrát 3 cm vastagságu, $\rho = 1,2$ g/cm^3 sürüségü müanyag burkolattal vettük körül. Az ilyen módon megvalósitott elektronegyensuly lehetővé tette a dózisintenzitás meghatározását a betatron *közvetlen környezetében* is. A betatron vákuumcsövében, kilépő ablakában és a levegőben keletkezett elektronokat az ionkamra burkolata

elnyeli, s igy - az alábbiakban ismertetendő korrekciókkal - a *detektor helyén* meghatározható volt a dózisintenzitás közelitő értéke.



5. ábra

A fékezési spektrum kisérleti vizsgálata



6. ábra

1 R-nek megfelelő "sugárzásmennyiség" a fotonenergia függvényében

Az eredményeket az 5. ábra tünteti fel. Az a/ görbe a /4/ összefüggés alapján számitott elméleti intenzitáseloszlás. A b/ görbe figyelembe veszi a primer sugárzás abszorpcióját a vákuumcső falában, a kilépő ablakban, az ionkamra burkolatában és falában (4 cm vastag, homogén, ρ = 1,2 g/cm^3 sürüségü, 8 s% H, 60 s% C, 32 s% O összetételü anyag feltételezésével[8]. A c/ görbével korrekcióba vettük azt a Bragg-Gray-elvből származtatható körülményt, hogy - különösen a 2 MeV feletti fotonenergiák esetében - növekvő energiával nő az egységnyi besugárzásidózisnak megfelelő "sugármennyiség" /intenzitás x idő, lásd a 6. ábrát/[9]. A c/ görbe integrálja tehát - feltéve, hogy az a/ görbe helyes - a mérőmüszeren leolvasott "röntgen per órák" számával arányos mennyiségnek tekinthető[10]. Mérésünk szerint 1 m távolságban a dózisintenzitás 7,7 R/h. Az a/ és c/ alatti területek aránya alapján (T_a/T_c = 1,72) - elfogadva a/ helyességét - a tényleges /a mérőmüszer fogyatékosságainak tekintetbevételével kapott/ dózisintenzitás 13,2 R/h. Az a/ görbe érvényességét közvetett módon, a c/ görbe alapulvételével igazoltuk ugy, hogy a detektor elé helyezett különféle anyagu és vastagságu abszorbensek esetében egyrészt leolvastuk a müszer jelzését, másrészt kiszámitottuk az intenzitás gyengülését a fotonenergia függ-

vényében /a c/ görbére vonatkoztatva/. A területek és a müszerjelzések arányát összehasonlitva megállapitottuk, hogy azok jó közelitéssel megegyeznek. Ezeket az adatokat néhány abszorbensre az 1. táblázatban tüntettük fel.

1. táblázat

abszorbens	mért R/h	Spektrum jelzése a 6. ábrán	mért R/h	számitott terület
			c/-hez viszonyitott aránya	
2 mm Al	7,4	d/	0,96	0,975
10 mm Al	6,8	e/	0,88	0,88
24 mm Al	5,7	f/	0,74	0,75
20 mm Fe	3,4	g/	0,45	0,5

Mivel a c/ görbét a/-ból származtattuk, a mérések pedig c/ helyességét megerősitik, ezért helyesnek kell elfogadnunk a/-t és a 13,2 R/h dózisintenzitást a betatrontól 1 m távolságban.

Néhány további mérési adat /ugyancsak a T_a/T_c = 1,72 faktorral korrigálva/:

táv /m/	R/h
0,5	60
1,5	6,5
2,0	3,45

A dózisintenzitás változásának négyzetes törvényétől /az 1 m távolságban mért értéket alapul véve/ az eltérés maximum 10%.

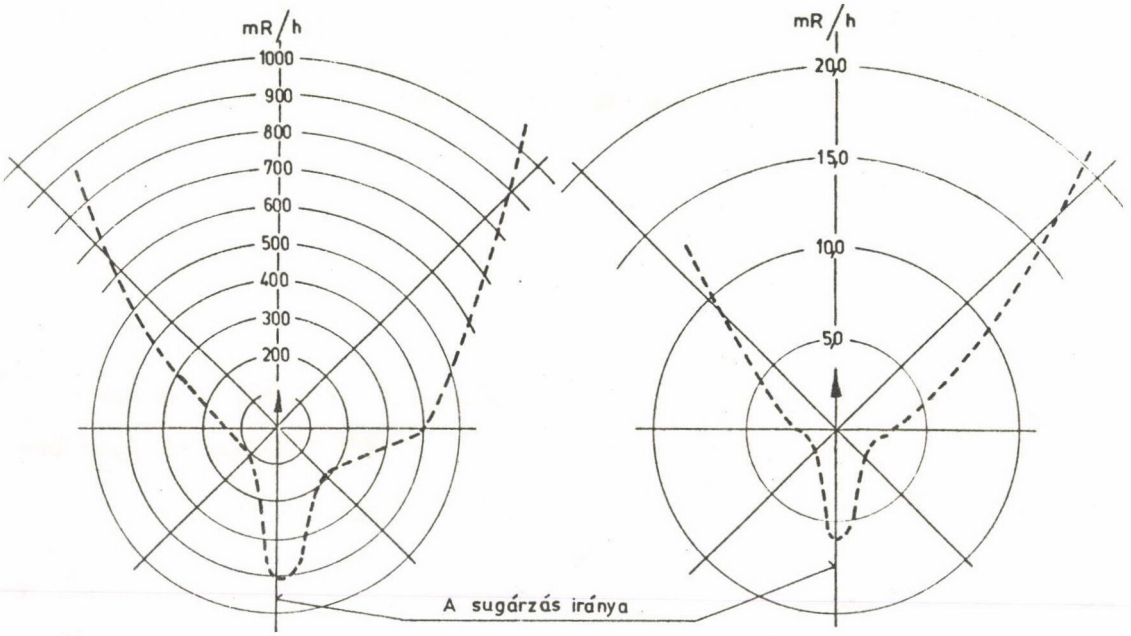
Környezeti dózisszintek

A VA-K-253 tipusu kamra használata esetén a müszer legérzékenyebb méréshatára 18 R/h végkitérésnek felel meg. A 2. mérési program szerint ezért a betatrontól nagyobb távolságban a nyaláb /a/, valamint a szórt sugárzás /b/ dózisintenzitás-térképét VA-J-15 tipusu müszer 500 cm^3-es ionkamrájával vettük fel, amely a mR/h tartományban is alkalmas dózisintenzitás mérésére.

a/ A nyalábban 1 m távolságban a müszer jelzése 30 R/h, ami az előző meggondolások és mérési eredmények értelmében nyilvánvalóan *hamis* adat. 50 m távolságban a müszer jelzése 2,8 mR/h, s ez - a levegőbeni abszorpció figyelembevételével - a VA-K-253 tipusu kamrával 1 m-en kapott 13,2 R/h értékkel van közel összhangban. A nyaláb sugárvédelmi szempontból különösen fontos zónájában tehát a VA-J-15 tipusu müszer jelzése már megbizható adatként tekinthető a személyi dózisterhelések meghatározásakor.

b/ A betatronból kilépő szórt sugárzás esetében a spektrum jellegét és

az elektronegyensuly feltételeit nehéz elméletileg megközeliteni. A szórt sugárzás dózisintenzitásának feltérképezése során ezért első lépésként 1 m távolságban /a sugárkup tengelyéhez képest 90, illetve 180°-os irányban/ végeztünk összehasonlitó méréseket mindkét müszerrel. A VA-J-18 tipusu müszerrel mérve, használtuk a kamraburkolatot és a T_a/T_c = 1,72 korrekciót /jólehet, szórt sugárzás esetében ez az eljárás nem látszik fizikailag teljesen megalapozottnak/. A mérések azt mutatták, hogy - a közvetlen nyalábban 1 m távolságban mért értékekkel (30 R/h, illetve 13,2 R/h) ellentétben - a két müszer jelzése között mindössze ±20% az eltérés. Ezt követően VA-J-15 tipusu müszerrel vettük fel a dózisintenzitás-térképet, a betatrontól 1 m, illetve 7,5 m távolságban /7.,8. ábra/.

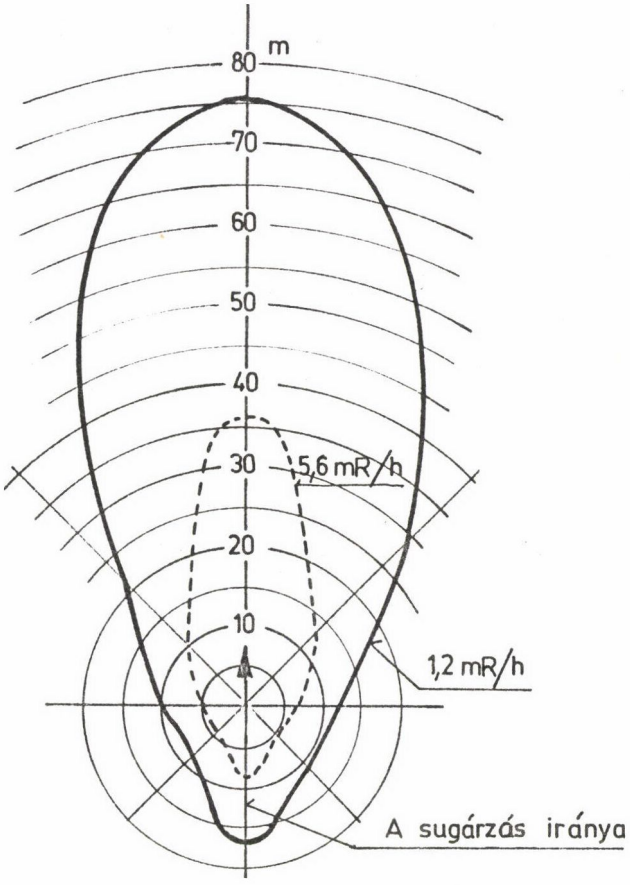


7. ábra
Dózisintenzitás 1 m távolságban

8. ábra
Dózisintenzitás 7,5 m távolságban

Méréseink alapján a 9. és a 10. ábrán az MSZ 836-66 előirásainak megfelelően az A, illetve B kategóriára vonatkozó izodózis-görbéket tüntettük fel (5,6, illetve 1,2 mR/h). A 10. ábra esetében a betatron előtt 40 mm vastag vas szórótest van elhelyezve. Ez a vastagság kivül esik ugyan a vizsgálati

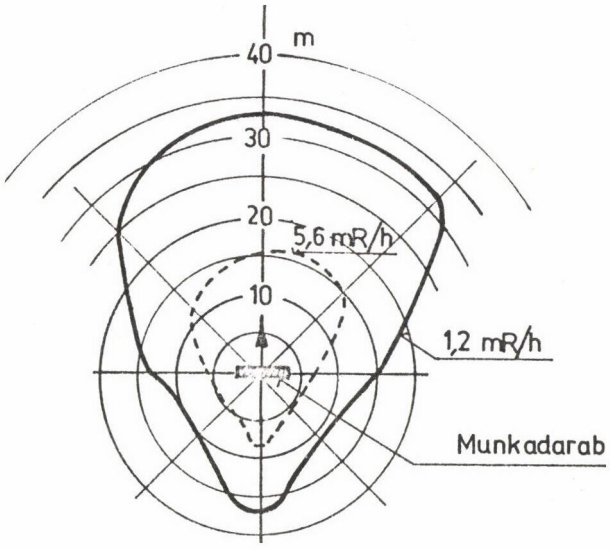
tartományon, azt azonban jól szemlélteti, hogy a védelmi távolságok /a helyszini sugárvédelmi mérések alapján/ a radiográfiai feladat jellegétől függően csökkenthetők.



9. ábra

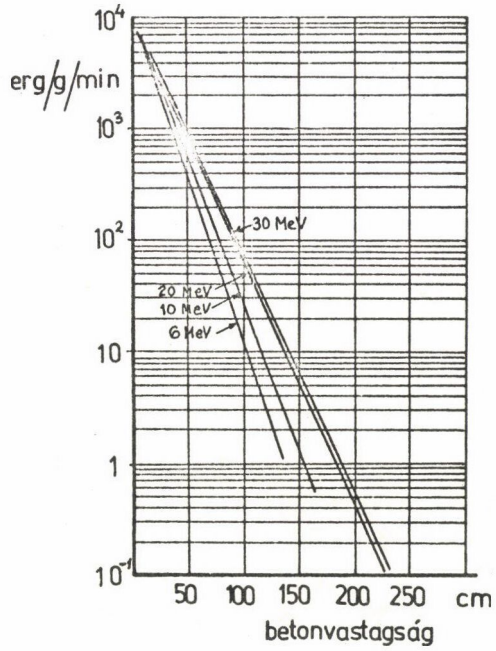
Izodózis-görbék az MSZ 836-66 alapján

A betatron laboratóriumi telepitésekor gondoskodni kell a besugárzó helyiség - elsősorban nyalábra merőleges - falvédelmének megfelelő kialakitásáról. A védelem tervezésekor tekintetbe kell venni a környezetből /falak, berendezések/, illetve a besugárzott tárgyról szórt sugárzást is. Ezzel kapcsolatos méréseket eddig nem végeztünk. Feltehetően értékes információt nyujtanak majd a



10. ábra

Izodózis-görbék 40 mm-es vas szórótest esetén



11. ábra

A beton gyengitése

közeljövőben meginduló radiográfiás helyszini vizsgálatok sugárvédelmi mérései.

Tájékoztatásként a 11. ábrán megadjuk a beton gyengitését 6, 10 20, 30 és 38 MeV betatronenergia esetében[b]. A beton sürüsége 2,35 g/cm^3, a fékezési sugárzás közvetlen nyalábjának intenzitása 1 m távolságban 1 mW/cm^2. A betonvédelem után az elnyelt dózisintenzitás erg/g/min egységekben van feltüntetve.

A 11. ábra adatai a viszonylag kis intenzitásu PMB-6 tipusu betatronra is alkalmazhatók becslésként. A méréseink során kapott 13,2 R/h dózisintenzitás hozzávetőleg $1{,}3\cdot10^{-3}$ mW/cm^2 intenzitásnak feleltethető meg /figyelembe véve az $\frac{1\ \text{erg}}{\text{cm}^2\text{s}} = 10^{-7}\ \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, illetve az 1 R/h ~ 3400 $\frac{\text{erg}}{\text{cm}^2\text{h}}$ összefüggéseket/, s ezért az ordináta léptéke esetünkben 770-szer kisebb. Ez azt jelenti, hogy pl. 50 cm vastagságu betonvédelem mögött az elnyelt dózisintenzitás

$$\frac{400\ \text{erg/g/min}}{770} \sim 310\ \text{mrad/h}.$$

Személyi dózismérők

A személyi dózismérők alkalmazhatóságának vizsgálata során különféle tipusu önleolvasós dózismérőket és filmdozimétert helyeztünk a betatron sugárzási terébe. A tapasztalatok a következők.

a/ A nyalábnak a betatronhoz közeli, nagy dózisintenzitásu tartományában a személyi dózismérők jelzése megbizhatatlan. A VA-J-18 /illetve a VA-J-15/ tipusu müszerrel 1 m távolságban mért értékekhez viszonyitva pl. a személyi dózismérők jelzése 3,6-szor /illetve 1,6-szor/ nagyobb.

2. táblázat

Dózismérő tipusa	Átlag jelzés a betatronból			
	0,3	0,5	0,8	1,0
	m távolságban (R/h)			
önleolvasós				
DK-0,2 /200 mrad/				50
DKP-50 /50 R/	1320	320		46
Stephen /50 R/				48
Stephen /5 R/			82	47
Stylo /0,5 rad/			81	
film				
102112				43,5*
102033				51*
102054				51*

*kevert spektrumu γ-sugárzás.

b/ A radiográfiás alkalmazások sugárvédelme szempontjából fontos szórt sugárzás /VA-J-15 tipusu müsszerrel mért/ 3oo mR/h dózisintenzitásu pontjában a különféle dózismérő tollak jelzése /2o perces besugárzás, tehát loo mR névleges dózis esetén/ sugárvédelmi szempontból elfogadhatóbb pontossággal tükrözi a tényleges viszonyokat.

3. táblázat

Dózismérő tipusa	Jelzés /mR/
önleolvasós	
IGV	72
D-01	62
Stylo	126
DK-0,2	119
film	
042007	50*
042108	50*

*Kevert spektrumu γ-sugárzás

ÖSSZEFOGLALÁS

A sugárnyalábban végzett mérésekkel sikerült reprodukálni az elméleti spektrumot, s ez arra utal, hogy a mérési eljárás alkalmas arra, hogy a betatronsugárzást a 6 MeV-ig terjedő energiatartományban mérje.

A nyalábban 1 m távolságban mért érték /13,2 R/h/ összhangban van a nagyobb távolságokban /30-50 m/ mért értékekkel, és bár a gépkönyv adataival /18 R/h/ nem teljes az egyezés, az eltérés valószinüleg a mérőeszközök különbözőségéből adódik. Erre utal az is, hogy olyan detektorokkal, amelyek kivitelük folytán nem voltak alkalmasak az adott feladatra, 30 sőt 50 R/h értékeket is lehetett mérni 1 m távolságban. Ennek az az oka, hogy a sugárzási térnek a betatron közelében igen erős az elektronszennyezése, mivel azt zömmel az ablak anyagából származó fotoelektronok alkotják.

A szórt térre vonatkozó méréseket - amelyek a védelem tervezése szempontjából szintén igen fontosak - meghatározott helyzetben /40 mm-es szórótest/ végeztük azzal a céllal, hogy a mérési eljárás alkalmasságát megvizsgáljuk, és a szórás jelentőségét becsülhessük. A jövőben - a konkrét alkalmazások

során - a szórt tér vizsgálatát kiterjesztjük néhány fontos és tipikus helyzetre is /szórótest, falak stb./, de hangsulyozzuk, hogy a müszeres helyszini ellenőrzésre minden telepités alkalmával szükség lesz.

A kisebb intenzitásu, szórt térben a személyi dózismérők nem mérnek pontosan, de a hiba nem nagyobb ± 50 %-nál. A nyalábban személyek várhatóan nem tartózkodnak, de esetleges baleseti besugárzást feltételezve, a személyi dózismérők a valóságos dózisnál nagyobb értéket mérnek, ami megnyugtatóbb, mint az esetleg módositott dózismérők használata, mert a fent leirt effektus korrigálása, változó helyzetü objektum esetén nem végezhető el egyértelmüen.

IRODALOM

1. *Komar, E. G.*, Атомная энергия 31/1971/426
2. *Bozóky L.*, Fiz. Szle. 21 /1971/ 59
3. *Hirling J., Szili S.*, Izotóptechnika 16 /1972/ 235
4. *Schiff, L. I.*, Phys. Rev., 83 /1951/ 252
5. NBS Handbook 55, Protection against Betatron-Synchrotron Radiations up to 100 Million Electron Volts.
6. *Koch, H. W., Carter, R. E.*, Phys. Rev., 75 /1946/ 1950
7. *Bozóky L.*, Fiz. Szle. 11 /1961/ 135
8. *Joffre, H., Pages, L. W.*, Coefficients d'atténuation massique et d'absorption massique pour les photons de 10 keV à 10 MeV. Rapport CEA-R-3655 /1968/
9. *Whyte, G. N.*, Principles of Radiation Dosimetry, John Wiley and Sons, 1959.
10. *Johns, H. E., Katz, L., Douglas, R. A., Haslam, R. N. H.*, Phys. Rev., 80 /1950/ 1062

HIREK

IZOTÓPOK A TUDOMÁNYBAN

A földikutyák életmódját igen nehéz tanulmányozni, mivel nagy ritkán jönnek a föld felszinére, s járataik vizsgálata, megrongálásuk nélkül, lehetetlen. A bukaresti Növényvédelmi Intézetben kobalttüt szurtak földikutyák bőre alá, s igy követték nyomon földalatti mozgásukat. Érdekes adatokhoz jutottak életmódjukról és viselkedésükről.
Élet és Tudomány, febr. 9.

A Lunohod-2 müszertartályának fütését ^{210}Po izotópos generátor szolgáltatja. Az izotóp felezési ideje kb. 2o hét. Főleg α-sugárzást bocsájt ki, γ- és neutronsugárzást csak kis mértékben, igy előállitása kisebb sugárvédelmet szükségel. Az izotópgenerátor a müszertartályon kivül helyezkedik el. Az általa termelt hő általában közvetlenül a kozmikus térbe sugárzódik ki, ha azonban a müszertartály hőmérséklete egy meghatározott érték alá süllyed, a hőt hőcserélő gáz viszi a generátorból a tartályba.
Izvesztija, márc. 4.

IZOTÓPOK ORVOSI FELHASZNÁLÁSA

Az Egészségügyi Minisztérium a negyedik ötéves tervben 12-15 millió forintot szán az izotópdiagnosztikai berendezések korszerüsitésére. Izotópos diagnosztikával 3o-4o helyen foglalkoznak hazánkban. Az anyagi kereteket az eddiginél koncentráltabban, elsősorban klinikákon és nagyobb tanácsi egészségügyi központokban kivánják felhasználni. A modern berendezések közül szcintillációs kamerából kettő, szcintigráfokból több dolgozik Magyarországon. A közeljövőben a Debreceni Orvostudományi Egyetem, az Orvostovábbképző Intézet

Radiológiai Tanszéke és az Országos Röntgen- és Sugárfizikai Intézet kap ilyen müszereket.
MTI hir, febr. 19; Esti Hirlap febr. 19; Daily News febr. 24; Keletmagyarország febr. 25.

Februárban a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség és az Országos Atomenergia Bizottság közös rendezésében háromnapos értekezlet volt Budapesten a sugárzás terápiás alkalmazásának lehetőségeiről.
Dolgozók Lapja /Tatabánya/ febr. 15.

IZOTÓPOK AZ IPARBAN

A Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézetének a Kohó- és Gépipari Minisztériummal kötött szerződése alapján az iparban jelenleg használt nukleáris müszereknek már 3o%-a automatikai érzékelőként szabályozókörökben müködik. Az ipari izotópalkalmazás legelmaradottabb területe a radiográfia. Az Épitésügyi és Városfejlesztési Minisztériummal közös célprogram a cementiparban, üvegiparban, mélyépitésben felmerülő különleges problémák megoldását hozhatja. Előkészületben van az Országos Vizügyi Hivatallal létesitendő együttmüködési szerződés, gátak tömörségének, vizáteresztésének, az öntözőviz mennyiségének, a hordalék mozgásának stb. megállapitására.
Népszabadság, márc. 11.

IZOTÓPOK A MEZŐGAZDASÁGBAN

Ma már 11 országban 19-féle élelmiszert tartósitanak besugárzással. A nagyüzemi felhasználáshoz nemzetközileg elfogadott szabványokra van szükség. Kidolgozásukban jelentős szerepet játszik a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség Élelmiszertartósitási osztálya. Legigéretesebbnek a burgonya csirázásának megátlását tartják. A sugárzással tartósitott magyar füszerpaprika pedig igen jó piacra találna pl. Hollandiában, ahol már engedélyezték fogyasztását.
Vas Népe, Délmagyarország febr. 16; Dolgozók Lapja febr. 2o.

NUKLEÁRIS MÜSZEREK

A müszeripar kooperációs kapcsolataiban különösen sikeres nukleáris müszernek bizonyult a sokcsatornás analizátor. A Geofizikai Intézet izotópos bauxitelemző berendezését több országban alkalmazzák.
Magyar Hirlap márc. 13.

VEGYES HIREK

A Népszava március 11-i száma interjut közölt a Központi Fizikai Kutató Intézetben és az Izotóp Intézetben folyó munka sugárvédelmi és munkavédelmi kérdéseiről, a neutrongenerátorok és az izotópok ipari felhasználásáról.

A Daily News febr. 1-i száma képet közöl az Izotóp Intézet gamma-sugárforrásáról.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

IV

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 4. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE



IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 4. SZÁM

BUDAPEST 1973. ÁPRILIS

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói

Szabadváry Ferenc, a kémiai tudományok doktora

Budapesti Müszaki Egyetem Általános Kémiai Tanszék, 1111 Budapest Szent Gellért tér 4

Szalóczy Bálint

Mezőgazdasági és Élelmezésügyi Minisztérium, 1055 Budapest Kossuth L. tér 11

Fehér István, Erdélyvári István

MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.41

Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa; Merétey Katalin, az orvostudományok kandidátusa; Kutas Vera

Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, 1221 Budapest Pentz K.u. 5

Dobó János, a kémiai tudományok kandidátusa

Müanyagipari Kutató Intézet, 1143 Budapest Hungária krt. 114

Ditrói Ferenc, Péter Ferenc, az orvostudományok kandidátusa; Lampé László, az orvostudományok kandidátusa; Lakatos Lajos

Debreceni Orvostudományi Egyetem Szülészeti és Nőgyógyászati Klinikája és Gyermekklinikája, Debrecen

Felelős kiadó:Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Gyenes Imre
Engedélyszám: III6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7581
1973. 4. szám
Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál//KHI/, Budapest V., József nádor tér 1, Távbeszélő: 180-850. Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára
Évi előfizetési dija: 240,-Ft Egyes szám ára: 20,-Ft
Példányszám: 250

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

T A R T A L O M

A radioanalitikai módszerek kialakulása..... 179
Szabadváry F.

Возникновение радиоаналитических методов

The Development of Radioanalytical Methods

Az atomtechnika alkalmazása a magyar mezőgazdaságban..... 186
Szalóczy B.

Использование ядерной техники в сельском хозяйстве Венгрии

Isotopic Techniques in the Hungarian Agriculture

Nukleáris létesitmények környezetellenőrzésének modern módszerei..... 199
Fehér I., Erdélyvári I.

Современные методы контроля окружности ядерный сооружений

Up-to-Date Methods in the Enviromental Control of Nuclear Establishments

Különféle fehérjék jódizotópokkal való jelzésének problémái..... 209
Kocsár L., Merétey K., Kutas V.

Проблемы мечения различных белков с изотопами йода

Problems in Labelling of Different Albumines with Iodine Isotopes

Nagyenergiáju sugárzás alkalmazása oldhatatlan enzimkészitmények előállitásában..... 215
Dobó J.

Применение мощного излучения в изготовлении нерастворимых препаратов энзимов

Preparation of Insoluble Enzymes by High-energy Irradiation

Harántlyuku kristály alkalmazása áramló folyadék radioaktivitásának mérésére gélszürő technikában..... 223
Ditrói F., Péter F., Lampé L. Lakatos L.

Применение кристалла с поперечным отсеком в гель-фильтрации для измерения радиоактивности протекающей воды

The Application of Transverse Well Type Scintillator for Measuring of the Radioactivity of Flowing Liquids in Gel Filtration

HIREK..... 228

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám

A RADIOANALITIKAI MÓDSZEREK KIALAKULÁSA

Szabadváry F.

Budapesti Müszaki Egyetem Általános Kémiai Tanszék és
Országos Müszaki Muzeum, Budapest

Возникновение радиоаналитических методов
Сабадвари, Ф.
Исторический очерк

The Development of Radioanalytical Methods
Szabadváry, F.
A historical survey

A természettudományok közül a fizika van mindig legelől, az határos mindig a mindenkori ismeretlennel. Az ismeretlennel való megszokott találkozás ellenére is a fizika ritkán találkozott fennállása óta akkora problémákkal és kérdőjelekkel, mint századunk elején, a radioaktivitás jelenségeinek felfedezése után. E jelenségek Rutherfordtól származó magyarázata, nevezetesen, hogy a radioaktiv elemek más elemekké bomlanak, tulajdonképpen a kémia épitményét renditette meg első lépésben, s csak utána érintette a fizikát. Hiszen igazolta az alkémistákat, s megcáfolta a modern kémia egyik alappillérét, az atomi oszthatatlanságon nyugvó daltoni atomelméletet, melynek segitségével a kémikusok minőségileg és mennyiségileg olyan szépen ki tudják papiron fejezni reakcióikat.

A fizikában nagy is volt az izgalom, a jobban érintett kémiában azonban ment tovább az élet nyugodtan. A kémikusok többsége akkoriban szerves kémikus volt, s szép és körülményes szintéziseiket az uj események nem érintették. Ha nem szerves kémikusok voltak, akkor fizikai kémikusok voltak. E fiatal tudomány lelkes müvelői pedig egyáltalán nem is hittek az atomban, melyet nagy mesterük, Wilhelm Ostwald valami, a kémiát régóta fertőző alkémista maszlagnak nyilvánitott, s hadba szállt ellene. Igaz, hogy legrosszabbkor tette: amikor annyi ezeréves mitosz után az atomok először adtak regisztrálható életjelt magukról. Ezt el is hitték, meg nem is, mindenesetre nem kötötte le tul sok figyelmüket. Ne felejtsük el, hogy a radioaktivitás jelenségeinek kutatásával, a felfedezést követő első két évtizedben, tucatnyi ember foglalkozott legfeljebb, sulypontilag két gócpontban: Párizsban Curie-éknél és Manchesterben Rutherfordnál.

Az analitikai kémia általában fürge tudomány. Mindig résen áll, figyel jobbra-balra, hogy mi történik más tudományok berkeiben, s gyorsan lecsap minden ujra, hogy kipróbálja, hogy és miként tudná azt analitikai vizsgálatok céljára hasznositani. Uj fizikai jelenségek első számu hasznositója az analitika szokott lenni. A radioaktivitás jelenségénél mégis eléggé lemaradt. Az első, a radioaktivitást hasznositó kifejezetten analitikai módszerrel csak 1925-ben jelentkezett Rudolf Ehrenberg. Módszere a radioaktiv lecsapószert alkalmazó gravimetria volt. Ezeket a módszereket ő radiometriás mikroanalizis /"Radiometrische Mikroanalyse"/ néven foglalta össze [1] . Dicséretes buzgalommal dolgozott ki olyan sulyszerinti módszereket a legkülönbözőbb elemek számára, ahol a lecsapószer ólomoldat volt. Mert neki csak radioaktiv ólom állt rendelkezésére rádium-D formájában, erre kellett mindent visszavezetnie. E téren nem kevés fantáziát mutatott. Még nátriumot is tudott ólommal gravimetriásan meghatározni: a nátrium-iont piroantimonátként leválasztotta, a csapadékot fölös o,l n sósavval antimon-oxiddá bontotta, a szürletben a fölös sósavhoz o,l m nátriumkarbonát oldatot adott ugyancsak fölöslegben, s utóbbi fölöslegét végül megint csak fölös rádium-D oldattal ólom-karbonátként mérte, és a szürletben átfolyt reagálatlan aktivitást mérte.

A radiogravimetriának nem volt különösebb előnye, pontosságban mögötte maradt - különösen ilyen bonyolult esetben - a kémiai módon történő meghatározásoknak. Természetszerüleg ismerni kellett alkalmazásához a lecsapóoldat radioaktiv koncentrációját is. Mindazonáltal rendkivül fontos lépést jelentett Ehrenberg módszere, mert hiszen első válfaja volt a radioaktiv reagenseket alkalmazó későbbi analitikai módszerek gazdag választékának, amelyek akkor alakultak ki, amikor már nem csupán a néhány természetes radioaktiv izotóp, hanem szinte minden kémiai elem mesterséges radioaktiv izotópja rendelkezésre állt. Ezekkel aztán az analitikai kémia számtalan reakcióját lehetett variálni és mérésre alkalmassá tenni; a sugárzás rendkivül érzékeny meghatározásokat tett lehetővé.

Különben a radioanalitika számos alapvető módszere akkor született, amikor csak a néhány természetes radioizotóp volt ismeretes. A segitségükkel végrehajtott analitika inkább kuriozitás, mint praktikus dolog volt. Az igy kidolgozott alapelvek viszont ugrásszerüen váltak jelentőssé a mesterséges radioaktivitás felfedezése után, különösen a mesterséges izotópok iparszerü előállitásának idején, a második világháboru után.

Ehrenberg a maga meghatározásaihoz nem tiszta rádium-D-oldatot használt, hanem ólomnitrátot, melyet rádium-D hozzáadásával sugárzóvá "jelzett".

A nyomjelzés, vagy ahogy feltalálói nevezték, "radioaktiv indikálás" nemcsak az izotópok analitikai alkalmazása során alapvető, hanem mindenütt, ahol nyitott radioaktiv izotópokat valamilyen célra felhasználnak. Már pedig a természettudományoknak, élőknek és életteleneknek egyaránt, kevés olyan ága van, ahol ez napjainkban ne történne meg.

A nyomjelzés módszerének feltalálói kémikusok; találmányuk az első fontos lépés volt a radioaktiv izotópok sokoldalu gyakorlati felhasználásának irányában. Egyuttal az első fontos esemény ezen a területen, amely nem Franciaországban vagy Angliában történt, hanem Bécsben. A feltalálók egyike, a munka vezéregyénisége pedig magyar volt.

Hevesy Györgynek családi körülményei lehetővé tették a század első évtizedében, hogy a legkülönbözőbb helyeken folytassa egyetemi és posztgraduális tanulmányait. Igy dolgozott Manchesterben, Rutherford mellett is. A laboratórium egyszer az osztrák kormány ajándékaképpen uránérc-feldolgozási maradékhoz jutott, amelyben azonban a nagy mennyiségü ólom elnyelte a rádium-D sugárzását. Rutherford odaszólt a fiatal ösztöndijasnak: "No fiam, most mutassa meg, mit tud, válassza el ezt a sok ólmot a rádium-D-től". Ebből a felszólitásból az is látszik, hogy bár Soddy már egy évvel korábban pedzette az izotóp elemek fogalmát, de azt egész világosan akkor még a nagy Rutherford sem fogta fel. A fogalom végleges tisztázása, különös tekintettel arra a tényre, hogy izotóp elemek kémiai módszerekkel nem választhatók el, szintén a Hevesy által most a felszólitás értelmében nagy lelkesedéssel megkezdett kisérletek egyik tanulsága lett. A fiatalembernek ugyanis csakhamar tapasztalnia kellett, hogy a rádium-D az ólomtól nem választható el. Hevesy, a radioaktivitás eme nagy "vándora", aki szinte egész életében "vendégségben" dolgozott, ill. kényszerült dolgozni, Bécsbe ment, a Rádiumintézetbe, ahol Panethtel folytatta a kisérletezést. Miután végleg meggyőződtek róla, hogy a rádium-D ólomtól el nem választható, e negativ eredménynek rögtön levonták egy pozitiv tapasztalatát, amelyről 1913-ban számoltak be: "A rádiumemanáció negyedik bomlási terméke, a Ra-D, mint ismeretes, az ólomnak minden kémiai reakcióját mutatja: ha Ra-D-t összekeverünk ólommal vagy ólomsókkal, akkor semmiféle fizikai vagy kémiai módszerrel az ólomtól el nem választható. Ha egyszer jól összekevertük a két anyagot, akkor koncentrációarányuk az oldatból kivett legkisebb ólommennyiségek esetén is azonos. Mivel a Ra-D-nek, aktivitása miatt, összehasonlithatat-

lanul kisebb mennyiségei határozhatók meg, mint az ólomnak, ezért, ha ólomhoz adjuk, annak minőségi és mennyiségi kimutatására szolgálhat; a Ra-D tehát az ólom "indikátoraként" viselkedik[2]. Bár a cikk elsősorban analitikai alkalmazásra utal, a szerzők ebben a közleményben a nyomjelzést ólom-kromát és -szulfát oldhatóságának meghatározására alkalmazták. E közleményért kapta Hevesy 3o évvel később, 1944-ben, a kémiai Nobel-dijat. Ez maga is bizonyitja, hogy milyen sokáig tartott, mig a körülmények utolérték ezt az őket messze megelőző találmányt, és a módszer alapvető fontossága teljes mértékben megmutatkozott. Hevesy gyors egymásután használta metodikáját fizikai-kémiai, metallográfiai, biológiai, botanikai problémák vizsgálatához és tisztázásához: a kifejezetten analitikai alkalmazás azonban Ehrenbergre maradt.

Mindazonáltal személy szerint Hevesynek a radioanalitika további ilyen fontos módszereket köszönhet. 1932-ben Freiburgban, az egyetlen helyen, ahol átmenetileg tanszékhez jutott, felfedezte a radioaktiv izotóphigitás analitikai módszerét. Mig a radioaktiv reagenseket alkalmazó módszerek a klasszikus kémiai analizis megfelelő változatai, addig az izotóphigitásnak radioaktivitás nélküli analogonja nincsen. Még mindig csak ólom szolgált radioaktiv anyagként. Módszerét Hevesy, munkatársával, Hobbie-vel ólom elektrogravimetriás meghatározási pontosságának ellenőrzésére dolgozta ki. Az izotóphigitásnál szükséges elválasztást természetszerüleg elektrogravimetriásan végezte[3].

Hevesy érdeme az aktiválásos analizis feltalálása is. Ez ma a nagy érzékenységü elemzésnek talán leghatásosabb és legfontosabb módszere. Az "aktiválás" szó hallatán a kémikus előtt rögtön atomreaktor képe jelenik meg, mint az aktiválásos analizis szükséges kelléke. Nos, amikor Hevesy e módszert feltalálta, 1936-ban még hire sem járt az atommáglyának.

1932-ben Bothe és Becker szokatlan sugárzást fedezett fel, amikor berilliumot bombázott α-részecskékkel. Okozóját Chadwick csakhamar a már régóta feltételezett semleges részecskével azonositotta. Joliot-Curie és felesége, Iréne Curie ebben ideális atommagbombázó anyagot talált mesterséges radioizotópok előállitására. Hevesy György - ekkor éppen Koppenhágában - gondolt arra, hogy a neutronbombázással elérhető elemátalakitást analitikai célra hasznositsa. Neutronforrásként rádium-berillium szolgált. Közleményének /1935/ bevezető sorai minden további magyarázatot fölöslegessé tesznek: "A szokásos analitikai kémiai módszerek, mint ismeretes, nem válnak be a ritka földfémek vizsgálatában, helyettük spektroszkópiai, röntgenspektroszkópiai és mágneses módszereket alkalmaznak. Ezeket a módszereket ki lehet egésziteni a neutronok analitikai felhasználásával, nevezetesen a mesterséges radioaktivitás és a ritka földfémeknek lassu neutronok iránt mutatott nagy abszorpciós képességének felhasználásával. Minőségi elemzés mesterséges radioaktivitással a bomlás félidő meghatározásán alapszik. ...Mi mesterséges radioaktivitással határoztuk

meg ittriumkészitmények diszpróziumtartalmát. Az eljárás a következő volt: o,1, 1% stb. diszpróziumot neodim-oxiddal kevertünk. Utóbbit azért választottuk, mert egyike a legolcsóbb ritka földfémeknek, és meghatároztuk a kapott intenprast. A meghatározandó ittriumintát aztán teljesen azonos körülmények között aktiváltuk neutronokkal: a diszprózium aktivitásával összehasonlitva az ittriumos minta diszpróziumtartalma 1%-nak adódott.... Ez az analitikai módszer közvetlen lehetőséget ad a keletkezett mag azonositására, és ez megkülönbözteti minden más analitikai módszertől, kémiaiaktól, röntgensugárzásoktól és mágnesesektől egyaránt, melyek mind a szóban forgó atom elektronjainak tulajdonságain alapulnak [4].

A következő aktiválásos analitikai cikk két évig váratott magára. 1938-ban jelent meg Seaborg és Livingwood tollából. 1946-ig alig egy tucatnyi következett belőlük. Azóta ... Nem is lehet tudni hány tizezer!

A radioanalitikának szintén a klasszikus analitikából levezetett módszere a radiometriás titrálás. Mind minden nyomjelzésen alapuló módszer, ez is valamilyen elkülönitést igényel. Igy kézenfekvő, hogy legelső megjelenési formája csapadékos titrálás volt. Klorid argentometriás radiometrikus titrálását a cseh Langer dolgozta ki 1941-ben, az Egyesült Államokban[5]. Módszere a háboru körülményei között olyan kevés figyelmet keltett, hogy 195o-ben szinte változatlanul ujra publikálta[6]. Ettől kezdve kezdett csupán ez az uj metodika elterjedni. Legtöbb előnyt az extrakciós titrálások területén jelentett, ahol igen kis anyagmennyiségek meghatározását tette lehetővé, sok esetben különféle anyagokét egymás mellett, elválasztás nélkül. Ez a válfaj Duncan és Thomas[7]. , ill. Korenman és társai[8]. érdeme, tökéletesitőjük az osztrák Spitzy. A teljesség kedvéért emlitsük meg, hogy bizonyos esetekben redox[9] továbbá savbázis[10] titrálások is elvégezhetők radiometriásan. Mindkét utóbbi változatot Magyarországon dolgozták ki.

A rendkivül szellemes "szubsztöchiometrikus" izotóphigitásos analizis a nyomelem-meghatározásnak ujabb hatékony eszköze, amelyből ujabb irodalomnyi alválfaj sarjadozott ki, mióta elvét a cseh Ruzicka és Stary 1961-ben kidolgozta[11].

A radioanalitika legujabb időkben történő szétágazásait, ujabb és ujabb metodikáit már nem lehet egy ilyen rövid közleményben még csak felsorolni sem, ez különben sem tartozik a kialakuláshoz. Hiszen radiometriás módszert a modern analitika számos más módszerével kombináltan is alkalmaznak, mint a radiokromatográfia különböző válfajai. Egészen sajátságos, a klasszikus analitikai gondolkodástól igen messze álló módszerei a radioanalitikának azok, melyek a sokat vitatott izotópcserén alapulnak. Ezek a módszerek annyira a fizikai - kémiai problémafelvetés felől "szüremlettek" az analitikába, hogy megalkotóját biztosan megtalálnom nem is sikerült.

Ha a radioanalitika fő módszereinek kialakulását megfigyeljük, meglepődve kell észrevennünk, hogy ezekben a dunavölgyi kis országok fiai, magyarok, osztrákok és csehek kimagasló szerepet játszottak. Talán azért, mert a gazdag országok gazdag laboratóriumaiban az érdeklődést a fizikai és a müszervonal kötötte le, szerényebb eszközök mellett viszont az elhanyagoltabb lehetőségek felé terelődött a figyelem.

Radiometriás munka természetesen radioaktivitást mérő készüléket igényel. Enélkül még az analitikus sem tud dolgozni. Tul messze vezetne itt részletekbe menni, de a fejlődés legfontosabb állomásainál itt is meg kell egy-egy pillanatra állnunk azon a változatos uton, amelyet Becquerel egyszerü fotolemezétől és Pierre Curie elektroszkópjától az analizátorokig megjártunk. A második állomás a cinkszulfid ernyőnek felvillanása volt α-részecskék hatására. 1903 fedezte fel a jelenséget Crookes [12] Angliában és tőle függetlenül Elster és Geitel Németországban [12] melyből 1908-ban fejlesztette ki a szpintariszkopot Regener [13]. Szemfárasztó módszer volt a szpintariszkóp felvillanásait számolni.

Rutherford és Geiger 1908-ban fémcsőből álló olyan eszközt konstruált, amelynek tengelyében drót haladt. Csökkentett nyomásu gázzal töltötték, a csőt és drótot feszültség alá helyezték. α-részecskék hatására ionizációs áramlökések keletkeztek [14]. A készüléken azután Geiger sokat dolgozott tovább, Németországba való hazatérte után is. Számos tökéletesitett formán keresztül jutott el végülis 1928-ban, munkatársával, Müllerrel, a nevüket viselő Geiger-Müller csőig [15], mely a radioaktivitás egy egész korszakát fémjelezte, s a radioanalitikusnak is nélkülözhetetlen segédeszközévé vált.

Amikor aztán a második világháboru után megszületett a fotonsokszorozó, Curren és Baker visszaemlékeztek a régi szpintariszkópra. Elővették a cinkszulfid ernyőt és kombinálták a sokszorozóval. β- és γ-sugarak hatását is sikerült jelezniök [16]. Más szcintilláció anyagok felfedezése még hatásosabbá tette a módszert, s lehetővé az egyes részecskék számlálását. Ezek közül az anyagok közül a legfontosabb, a talliummal aktivált NaI kristály, Hofstädter nevéhez füződik 1948-ban [17].

IRODALOM

1. *R. Ehrenberg*, Biochem. Z. 164, /1925/ 183; 172, /1926/ 10; 183, /1927/ 63

2. *G. Hevesy, F. Paneth*: Z. anorg. Chem. 82, /1913/ 323

3. *G. Hevesy, R. Hobbie*: Nature 128, /1931/ 1038; Z.anal.Chem. 88, /1932/ 1

4. *G. Hevesy, H. Levi*, Nature 136 /1931/ 103, Kgl. Dansk. Vidensk. Selsk. Math. Phys. Medd. 14 /1936/ 5
5. *A. Langer*, Phys. Chem. 45 /1941/ 639
6. *A. Langer*, Anal. Chem. 22 /1950/ 1288
7. *J.F. Duncan, F.G. Thomas*, J.Inorg. Nucl.Chem. 4 /1957/ 376
8. М.Коренман, Ф.Р.Шеянова, Т.Н.Микрохина, Т.Н.Трапезникова, Ж.анал.хим. 12/1951/48
9. *T. Braun*, Chim.analyt. 46 /1964/ 61
   T. Braun, E. Körös, Proc. IAEA Symp. Radio-Chemical Methods of Analysis, Vienna 1965, 213
10. *L. Erdey, O. Gimesi, F. Szabadváry*, Talanta 16 /1969/ 445
11. *J. Ruzicka*, Chem. Listy. 56 /1962/ 783, *J. Ruzicka, J. Stary*, Talanta 8 /1961/ 228
12. *W. Crookes*, Proc. Roy. Soc. 71 /1903/, 405, *J. Elster, W. Geitel*, Phys.Z. 4 /1903/ 439
13. *E. Regener*, Verh.Deutsch. Phys.Ges. 10 /1908/ 78
14. *E. Rutherford, H. Geiger*, Proc. Roy. Soc. London 181 /1908/ 141
15. *H. Geiger, O. Müller*, Phys. Z. 29 /1928/ 839
16. *S.C. Curren, W.R. Baker*, Rev.Sci.Instr. 19 /1948/ 116
17. *R. Hofstädter*, Phys.Rev. 74 /1948/ 100

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám

AZ ATOMTECHNIKA ALKALMAZÁSA A MAGYAR MEZŐGAZDASÁGBAN

Szalóczy B.
Mezőgazdasági és Élelmezésügyi Minisztérium, Budapest

Áttekintés az izotópok és sugárzások alkalmazásának majdnem két évtizedes fejlődéséről a növénytermesztési, a talajtani, agrokémiai, növényvédelmi, állatorvostudományi, állattenyésztési, élelmiszertárolási és tartósitási kutatásban. Tervek.

Использование ядерной техники в сельском хозяйстве Венгрии
Салоци, Б..

Обзор почти двух-декадного развития применения радиоизотопов и излучений в исследовании по полеводству, почвоведению, агрохимии, защите растений ветеринарии, животноводству, хранению и сохранению пищевых продуктов. Планы.

Isotopic Techniques in the Hungarian Agriculture
Szalóczy, B.

A survey of the almost two-decade development of the application of radio-isotopes and radiations in the research on plant cultivation, soil science, agrochemistry, plant protection, veterinology, animal husbandry, food storage and food preservation. Plans.

Az izotópok felhasználására irányuló kutatás ágazatainkban 18 éves mul ra tekint vissza. Korábban elsősorban a nyilt sugárforrásokat használó nyomjelzéses módszerek terjedtek el. Figyelemreméltó eredményeket értek el a biológiai folyamatok nyomonkövetésében, növényvédelmi és állatgyógyászati anyagok hatásmechanizmusának felderitésében, a talajban levő folyamatoknak, a mütrágyahasznosulásnak, az öntözés következtében fellépő változások jelzésében.

Ezt követően egyre kiterjedtebben került sor a szorosabb értelemben vett atomtechnika felhasználására. Zárt sugárforrások sugárzásának közvetlen hatását vizsgálták növények generativ és vegetativ részeinek besugárzásánál; mezőgazdasági termékek, élelmiszerek besugárzásával pedig az enzimrendszerükben és mikroflórájukban fellépő változásokat kutatták; tanulmányozták rovarok szaporodóképességének a besugárzás hatására fellépő változását.

Különböző szintü izotóplaboratóriumok széles hálózata jött létre. Felszerelésükben az Országos Atomenergia Bizottság jelentős segitséget nyujtott.

Az izotóplaboratóriumok száma ágazatonként:

növénytermesztés, kertészet	8
növényvédelem	1
állattenyésztés, állatgyógyászat	3
talajtan	3
élelmiszer	1
összesen	16

Zárt sugárforrás az Agrártudományi Egyetem és a Gödöllői Kertészeti Egyetem sugárkertjében, valamint egy nagy teljesitményü sugárforrás a Központi Élelmiszeripari Kutató Intézetben található.

Az izotópalkalmazás terén folyó kutatás legfontosabb eredményeiről és az e területen kitüzött célokról az alábbiakban ágazatonként számolunk be. Nagyobb sulyt kivánunk adni a szorosabb értelemben vett atomtechnikának, tehát az atomsugárzással előidézett jelenségeknek, és csak kisebb mértékben foglalkozunk a nyomjelzés alkalmazásával.

NÖVÉNYTERMESZTÉS

A növénytermesztési kutatómunka több tudományterület eredményeinek szintézisére épül. Ebben a fejezetben - az átfedések elkerülése végett - csak a növényélettani, növénynemesitési és radiostimulációs kérdéseket vizsgáljuk meg.

NÖVÉNYÉLETTAN

A hazai élettani kutatások zöme a mezőgazdasági kutatóintézetekben, az egyetemek tanszékein indult meg és folyik napjainkban is. Az alapkutatásokhoz csatlakoztak a József Attila Tudományegyetem és az Eötvös Loránd Tudományegyetem növényélettani intézetei.

A táplálkozásélettani témák közül a karbamidhasznositási vizsgálatok, illetve a kedvezőtlen környezeti tényezőknek / alacsony hőmérséklet, pH stb./ a különféle nitrogénvegyületek /NO_3, NH_4 alakban adagolt nitrogén/ felvételére gyakorolt hatását tanulmányozták. Ez utóbbihoz csatlakozik a különféle élettanilag aktiv anyagok hatásának tanulmányozása.

Eredményesen alkalmazták az atomtechnikai módszereket a növények télállóságának és szárazságtürésének vizsgálatára, illetve nemesitési törzsanyag élettani prognosztizálására.

Stabil nitrogén felhasználásával vizsgálták a különféle mütrágyák és az öntözés hatását egyes szántóföldi növények /borsó, kukorica/ fehérjetartalmának és a fehérjék összetételének alakulására.

Intenziven tanulmányozták és tanulmányozzák jelenleg is a kukorica és a cukorrépa heterózisjelenségeit.

Kukoricavonalakban és hibridekben a foszfor és nitrogén felvételét és hasznositását, a biológiailag aktiv foszforvegyületek beépülését, a vonalak és hibridek fotoszintetikus aktivitását tanulmányozták. Cukorrépában diploid és tetraploid fajták és hibridek foszfor-, kén-, nátrium-, kálium- és rubidiumfelvételét vizsgálták. Érdekes volt a tetraploid partner fölényének jelentkezése a diploiddal szemben.

Előirányzott kutatási feladatok

- A fajták fotoszintetikus sajátosságainak jellemzésére alkalmas módszerek kidolgozása agronómiai hasznositásra. Tömegvizsgálatokra is alkalmazhatóvá kell tenni az asszimiláció/disszimiláció hányadosának meghatározására alkalmas eljárásokat.

- Tovább kell tanulmányozni - fajokon belül - a termelésben legelterjedtebb fajták táplálkozásélettani sajátosságait. A makrotápanyagok leggazdaságosabban alkalmazható legkedvezőbb arányának meghatározásával növelhetnénk a gazdasági növények terméshozamát.

- Szélesebb bázison kell foglalkozni a biológiailag aktiv vegyületek /növényi hormonok, peszticidek, defoliánsok, stb./ alkalmazási lehetőségeinek és hatásmechanizmusának vizsgálatával.

NÖVÉNYNEMESITÉS

A hazai szaksajtóban már 1928-ban javasolták a sugárforrások felhasználását nemesitési alapanyagok előállitására. Az első kisérletek azonban csak 1953-ban Martonvásáron kezdődtek, árpával.

A mutációs nemesités eddigi gyakorlati eredményességével számolva, országos szinten, az alkalmazás mértékét megfelelőnek tartjuk. Az MTA Mezőgazdasági Kutató Intézetében sugárzással indukált mutációval állitottak elő lisztharmat-rezisztens tavaszi árpákat. A meglévő gazdag alapanyagból a következő években több, gazdaságilag is értékes fajtajelölt bejelentése várható /kukorica, borsó, buza, őszi árpa, gyógynövények, disznövények, stb./.

Előirányzott kutatási feladatok

- Kórokozókkal szemben ellenálló fajták előállitása.
- Beltartalom /fehérje, olaj, aminosav, alkaloida, stb./ növelése mutációs uton.
- A mechanizálás és kemizálás igényeit kielégitő mutáns alapanyagok előállitása.

RADIOSTIMULÁCIÓ

Hazánkban radiostimulációs kezelést 1959-től végeztek ^{32}P izotóppal. A kutatások 1960-ban Gödöllőn kezdődtek, majd később bekapcsolódott a munkába a karcagi /füfélék/ és a sopronhorpácsi /cukorrépa/ intézet is.

Gödöllőn ujabban más növények /paradicsom, silókukorica, bab, hónapos retek, stb./ radiostimulációjával is foglalkoznak és több esetben pozitiv hatásról számolnak be.

A tanszékeken és intézetekben folyó kutatás, elméleti és módszertani szinvonala, eredményessége alapján, nemzetközi elismerést vivott ki magának.

Előirányzott kutatási feladatok

- A radiostimulációs vizsgálatok további célja, hogy megfelelő sugárkezeléssel /dózissal/ a növény életfolyamatában a termelés szempontjából kedvező változásokat váltsanak ki. A variációs lehetőség igen nagy. Néhány kiemelt gyakorlati cél:

  - Az örökletesen egymagvu /monogerm/ tetraploid cukorrépafajták csirázási erélyének fokozása.
  - Burgonyagumók átlagsulyának növelése.
  - Paradicsom koraiságának fokozása.
  - Tavasziárpa stimulativ besugárzásával a kalászokban lévő szemszám növelése.

A stimuláció általános jellemzője, hogy a kezelés maradandó hatást nem kelt. Az eredmények nehezen reprodukálhatók, ezért változatlanul szükséges az alapjelenségek szervezett kutatása:

- különféle növényfajták speciális élettani alapjainak vizsgálata;
- a biológiailag aktiv vegyületek sugárhatásra bekövetkező változásainak vizsgálata;
- a nagyüzemi kisérletekhez /főleg zöldségnövényeknél/ az optimális dózisok megállapitása.

TALAJTANI ÉS AGROKÉMIAI KUTATÁSOK

A hazai mezőgazdasági kutatásban mintegy másfél évtizeddel ezelőtt a talajtan és agrokémia területén indult meg az izotópos módszerek alkalmazása. A gyakorlati eredmények áttételesen jelentkeznek a trágyázási, talajmüvelési, talajjavitási, öntözési, talajvédelmi eljárások fejlődésében. Az izotóptechnikát e területeken vizsgálati módszernek kell tekinteni.

A talajtani kutatásban jelentős eredmények születtek:

- a talajok abszorpciós viszonyainak, az ionkicserélődés törvényszerüségeinek meghatározásában;
- a szikes talajok javitásakor lejátszódó folyamatok tanulmányozásában;
- a talajban lévő tápanyagok /elsősorban a foszfor/ felvehetőségének, mozgásának vizsgálatában;
- a mütrágyák legkedvezőbb elhelyezési módjának, az egyes mütrágyák tápanyagtartalma hasznositási mértékének megállapitásában;

- egyes növények tápanyagfelvételi dinamikájának meghatározásában;
- a talajok vizháztartásának vizsgálatában;
- a mikroelemek felvételének tőzegtalajokon történő tanulmányozásában;
- a jelzett mütrágyák készitésénél, stb.

Előirányzott kutatási feladatok

- Szikes talajok főbb kémiai sajátosságainak és a kémiai javitóanyag hatásmechanizmusának vizsgálata.
- A talajok tápanyagellátottságának megitélésére szolgáló módszerek továbbfejlesztése és rutinszerü alkalmazásuk bevezetése.
- A talajok és növények természetes radioaktivitásának vizsgálata.
- A hasadási termékek megkötődése és talajbani mozgása.
- A talajok nitrogénforgalmának stabil izotóppal történő vizsgálata.
- Szennyvizek biológiai fertőtlenitése besugárzással, a szennyviz és a szennyiszap mezőgazdasági hasznositása végett.

NÖVÉNYVÉDELMI KUTATÁSOK

A kártevők elleni védekezés környezetkimélő módszerei iránt világszerte fokozott igény nyilvánul meg. A szelektiv védekezés, ezen belül a biológiai védekezés kezd előtérbe kerülni, közelebbről pedig a γ-sugárzással sterilizált populációk kibocsátásának módszere - más néven genetikai védekezés - igér lehetőségeket.

Az eddigi ilyen természetü kutatások - a Növényvédelmi Kutató Intézetben - kiterjedtek bogarak /májusi cserebogár, babzsizsik, almamoly , almailonca, keleti gyümölcsmoly, szilvamoly, kukoricamoly/ sugárbiológiai, besugárzástechnológiai, tömegtenyésztési, stb. vizsgálatára, és részét képezik a "Bioszféra védelme" programnak is.

A genetikai /autocid/ védekezési módszer a következő kártevők ellen irányul: almamoly, almástermésüek sodrómolyai, szilvamoly és keleti gyümölcsmoly, babzsizsik.

A KÉKI-vel közösen müködtetett két γ-sugárforrással sterileznek.

Előirányzott kutatási feladatok

A középtávu kutatási program 1971-198o évekre a tematikát - a fentiek szerint - megszabta.

Az 1985-ig kiterjeszthető távlati tervbe az emlitetteken kivül felveendő kutatási feladatok:

- a cseresznyelégy,
- a hagymalégy,
- a káposztalegyek és
- a kukoricamoly elleni

genetikai védekezés.

ÁLLATORVOSTUDOMÁNYI ÉS ÁLLATTENYÉSZTÉSI KUTATÁSOK

Az állatélettani, az állatorvostudományi és az állattenyésztési kutatások területén az atomtechnika alkalmazása három főszempont szerint történik:

- háziállatok termőképességének fokozása,
- állatbetegségek kártételeinek csökkentése,
- bioszféra- /környezetvédelmi/ kutatás.

A hazai kutatások területén ezen a téren jelentős elmaradás mutatkozik. Az alkalmazás fő bázisát jelenleg is az Állatorvostudományi Egyetemen 1964-ben létrehozott bázislaboratórium képezi. Az eddigi hazai vizsgálatok korszerüek és a nemzetközi szakkörökben elismertek.

Előirányzott kutatási feladatok

- Háziállataink aktiv és passziv parazitológiai immunitásának kialakitása a paraziták kártételeinek csökkentése céljából.
- Sugárzás utján iparilag előállitható oltóanyagok, vakcinák előállitása.
- A nem-fehérje nitrogén anyagcsere vizsgálata stabil izotópokkal a szarvasmarha takarmányozásának javitása céljából.
- Só-vizháztartás vizsgálata egyes fertőzőbetegségek másodlagos elhullás okozta kártételének csökkentése és az optimális terápia kidolgozása céljából.
- Endokrinológiai problémák vizsgálata in vitro módszerekkel az optimális termőképesség környezeti feltételeinek megismerése és kialakitása, továbbá a szarvasmarha és sertés nem-fertőző eredetü meddősége által okozott szaporulatkiesés csökkentése céljából.
- A bioreguláció vizsgálata, különös tekintettel az állatok hus- és gyapjuhozama, tej-, tojás- és májtermelésének fokozása céljából.
- Kalcium - magnézium - foszfor /ásványi/ anyagcsere vizsgálata, elsősorban a borjak és malacok optimális ásványianyag-ellátottságának biztositására.
- Nyomelemek anyagforgalmának vizsgálata. Hiányuk, tuladagolásuk, helytelen arányban történő adagolásuk szaporodás-, illetve termeléscsökkentő hatásának vizsgálata, optimális normák kidolgozása.

Ezeken kivül célunk a különféle módszertani vizsgálatok továbbfejlesztése és ujabb módszerek kidolgozása is.

ÉLELMISZERTÁROLÁS ÉS TARTÓSITÁS

Az élelmiszerek és élelmiszerkészitmények tárolhatóságának javitása, a romlási veszteségek csökkentése az élelmezésügynek világviszonylatban egyik legjelentősebb feladata. Jelenleg a termények és termékek lo-3o%-a megy veszendőbe a ki nem elégitő tárolás és feldolgozás következtében, másrészt az életszinvonal általános emelkedése is abban az irányban hat, hogy nemcsak az élelmiszerek mennyiségi megőrzéséről kell gondoskodnunk, hanem eredeti biológiai és élvezeti értékük minél tökéletesebb megtartására is törekednünk kell.

1. táblázat

ÁTTEKINTÉS A KÜLÖNBÖZŐ ORSZÁGOKBAN KÖZFOGYASZTÁSRA ENGEDÉLYEZETT BESUGÁRZOTT ÉLELMISZEREKRŐL

/Termékenként csoportositva/

Termék	Ország	A besugárzás célja	Sugárforrás	Dózis /engedélyezett tartomány/	Az engedély kelte
Gyümölcs és zöldség					
Burgonya	Szovjetunio	kihajtásgátlás	^{60}Co	1o	1958. március 14.
	Kanada	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 1o	196o. november 9.
	USA	kihajtásgátlás	^{60}Co	5 - 1o	1964. junius 3o.
			^{137}Cs	5 - 1o	1964. október 2.
			$^{60}Co+^{137}Cs$	5 - 15	1965. november 1.
	Izrael	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 15	1967. julius 3.
	WHO xx/	kihajtásgátlás	^{60}Co vagy ^{137}Cs	max. 15	1969. április 12.
	Spanyolország	kihajtásgátlás	^{60}Co	5 - 15	1969. november 4.
	Magyarország x/	kihajtásgátlás	^{60}Co	1o	1969. december 23.
	Dánia	kihajtásgátlás	1o MeV-os elektr.	max. 15	197o. január 27.
	Hollandia	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 15	197o. március 23.
			4 MeV-os elektr.	max. 15	197o. március 23.
Vöröshagyma	Kanada	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 15	1965. március 23.
	Szovjetunio	kihajtásgátlás	^{60}Co	6	1967. február 23.
	Izrael	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 1o	1968. julius 23.
	Hollandia x/	kihajtásgátlás	^{60}Co	max. 15	1971. február 5.
Gyümölcsszáritmányok	Szovjetunió	rovartalanitás	^{60}Co	1oo	1966. február 13
Friss gyümölcsök és zöldségfélék	Szovjetunió	radurizálás	^{60}Co	2oo-4oo	1964. julius 11.
Gomba	Hollandia	kalapnyilásgátlás	^{60}Co	max. 25o	1969. október 23.
			4 MeV-os elektr.	max. 25o	1969. október 23.
Spárga	Hollandia x/	radurizálás	^{60}Co	max. 2oo	1969. május 7.
Szamóca	Hollandia x/	radurizálás	^{60}Co	max. 25o	1969. május 7.
			4 MeV-os elektr.	max. 25o	1969. május 7.
Kakaóbab	Hollandia x/	rovartalanitás	^{60}Co	max. 7o	1969. május 7.
			4 MeV-os elektr.	max. 7o	1969. május 7.
Füszerek és izesitők	Hollandia x/	redicidálás	^{60}Co	8oo-1ooo	197o. szeptember 13.
			4 MeV-os elektr.	8oo-1ooo	197o. szeptember 13.

Termék	Ország	A besugárzás célja	Sugárforrás	Dózis /engedélyezett tartomány/	Az engedély kelte
Gabona és szemestermények					
Gabona	Szovjetunió	rovartalanitás	^{60}Co	3o	1959.
Buza és buzatermékek	USA	rovartalanitás	^{60}Co	2o-5o	1963. augusztus 21.
			^{137}Cs	2o-5o	1964. október 2.
			5 MeV-os elektr.	2o-5o	1966. február 26.
Buza és őrölt buzatermékek	WHO xx/	rovartalanitás		max. 75	1969. április 12.
Hus és hal					
félkész, nyers marha-, sertés- és nyulhustermékek /müanyag tasakban/	Szovjetunió x/	radurizálás	^{60}Co	6oo-8oo	1964. julius 11.
Vágott-, tisztitott baromfi /müanyag tasakban/	Hollandia x/	radurizálás	^{60}Co	max. 3oo	196 . december 31.
Konyhakész hustermékek /sülthus, rostélyos /müanyag tasakban/	Hollandia x/	radurizálás	^{60}Co	5o-1oo	197o. november 13.
			4 MeV-os elektr.	5o-1oo	197o. november 13.
Egyéb termékek					
Száraz élelmiszer-koncentrátumok	Szovjetunió	rovartalanitás	^{60}Co	7o	1968. junius 6.
Mélyhütött ételek	Nagybritannia xxx/	radappertizálás	^{60}Co	25oo	1969. december
	Hollandia xxx/	radappertizálás	^{60}Co	min. 25oo	1969. november 27.
Friss, konzervált és folyékony élelmi anyagok	Hollandia xxx/	radappertizálás	^{60}Co	min. 25oo	1972. március 8.

x/ kisérleti tételekre

xx/ ideiglenesen elfogadva

xxx/ speciális betegellátás céljára.

Jelenlegi tárolási és tartósitási módszereinkkel mindezek a feladatok kielégitően nem oldhatók meg. A tárolási és a tartósitási módszerek korszerüsitése és uj eljárások kidolgozása ezért az élelmiszergazdasági kutatás legjelentősebb munkaterületeihez tartozik.

A tárolási és romlási veszteségek csökkentése, valamint a minőség javitása terén egyaránt sokatigérő az ionizáló sugárzások alkalmazása, részben önmagukban, részben egyéb eljárásokkal kombinálva.

A kis sugárdózissal való kezelés, a radurizálás látszik a legelterjedtebbnek és bevezetettnek világszerte. Az ionizáló sugárzásos tartósitással szembeni bizalmatlanságot áttörte az Egészségügyi Világszervezet 1969. évi ajánlása, amely első lépésként megengedhetőnek tartja a burgonya és a buza besugárzását és az ezekből készült termékek fogyasztását. Ma már körülbelül 24 besugárzott termék, illetve termékcsoport fogyaszthatóságához járultak hozzá a világon az egészségügyi hatóságok /lásd 1. táblázat/. Ezek az engedélyek részben korlátlan mennyiségre, részben kisérleti tételekre vonatkoznak.

Az ionizáló sugárzás különféle élelmiszergazdasági felhasználásával hazánkban már 15 éve folynak kisérletek. Kutatásaink világszinvonalat képviselnek.

E vizsgálatok és a világszerte folyó kutatások eredményei alapján megállapitható, hogy az ionizáló sugárzások önmagukban vagy más tartósitási módszerekkel kombináltan az élelmiszerek tárolási és romlási veszteségei csökkentésének uj, sokat igérő lehetőségét nyujtják. Alkalmazásuktól nemcsak a romlási veszteségek csökkenése várható, hanem egyben a következő előnyök is:

- jobb termékminőség,
- a szállithatósági távolság megnövekedése és ezzel a piac kiszélesitése,
- a tartósitóipari szezon meghosszabbitása és a feldolgozó kapacitások egyenletesebb, jobb kihasználása,
- az élelmiszerekkel és takarmánytápokkal közvetitett megbetegedések számának csökkentése.

Az eredményeket az alábbiakban lehet összefoglalni:

- Burgonyánál lo krad dózissal előidézett kihajtásgátlással a tárolási veszteségek 5-8%-kal csökkenthetők, és a burgonya minősége és technológiai tulajdonsága is kifogástalan marad. Engedély alapján 4o tonnát sugároztak be, amit 1972. májusában értékesitettek.
- Vöröshagymánál a kihajtási arány 85%-ról 14%-ra csökkent.
- A csiperkegombával végzett kisérleteknél 25 krados sugáradaggal a csiperkegomba eltarthatósága, 5 ^{o}C körüli hütőtárolás esetén, 3 napról 9 napra volt növelhető.
- Szamócával végzett kisérleteknél a o,2 - o,3 Mrados γ-sugárzással kezelt anyag romlási vesztesége a leszedés és értékesítés közötti 3-7 napos időszakban csupán felét-egynegyedét teszi ki a kezeletlen szamócáénak.

- A vágott és tisztitott csomagolt baromfi tárolhatósága o-4 °C hőmérsékleten, o,2-o,4 Mrad dózissal, két-háromszorosára /legalább lo-15 napra/ növelhető. Különösen figyelemreméltó az a néhány tájékoztató jellegü eredmény, amely szerint a szalmonellával való fertőzöttség teljesen eliminálódik.

- A kombinált tartósitási eljárások közül a kriokoncentrált gyümölcslé besugárzásos tartósitásával értek el kitünő eredményeket. A gyümölcskészitmény igy korlátlan ideig eltartható.

Dobozolt huskészitményeknél a besugárzott és hőkezelt minták tárolhatósága azonosnak, érzékszervi tulajdonsága jobbnak bizonyult, mint a hagyományos, erőteljes hőkezelés után.

- Jelentős eredményeket értek el a füszerpaprika, füszerkeverékek és a tartósitóiparban használt cukor mikrobiológiai szennyezettségének csökkentésében. 1 Mrad dózis gyakorlatilag csiramentessé teszi ezeket az anyagokat, s igy a késztermékek hőkezelése csökkenthető, s jelentős minőségjavulás érhető el.

A besugárzás közegészségügyileg ártalmatlan voltát a hazai etetési kisérletek eredményei is bizonyitják.

Előirányzott feladatok

A kutatási program irányai és témái az elkövetkezendő években az alábbiakban foglalhatók össze:

Gyártmányfejlesztés

- Füszerek, élelmiszeripari enzimkészitmények és más élelmiszeripari adalékanyagok mikróbás szennyezettségének csökkentése.

Tárolás

- Zöldség- és gyümölcsfélék tárolási idejének meghosszabbitása.
- Üzemesitési kisérletek burgonya, vöröshagyma, termesztett csiperkegomba, szamóca, vágott és tisztitott baromfi eltarthatóságának megnövelésére.
- Gyümölcsök száradási sebességének növelése.
- Gabonafélék rovartalanitása.

Tartósitás

- Uj tartósitási eljárások kidolgozása és a termékek vizsgálata a fogyasztói egészségügy szempontjából.
- Kombinált élelmiszertartósitási eljárások kidolgozása, élelmiszerek utóérésének szabályozása /hőközlés vagy hőelvonás, tartósitás és besugárzás, ill. tartósitószerek és besugárzás együttes alkalmazása/.

A hőkezelés és a besugárzás együttes alkalmazásán alapuló eljárások üzemi kisérleteivel, a besugárzottság tényének kimutatására szolgáló módszerek kidolgozásával és a tartósitott termékek fogyasztói egészségügyi vizsgálatával tovább foglalkozunk. A tartósitási eljárások kidolgozásával egyidejüleg toxikológiai vizsgálatokkal és más biológiai tesztekkel tisztázni kivánjuk a kezelt élelmiszerek ártalmatlanságát, hogy a müszakilag már kidolgozott eljárás alkalmazását az egészségügyi engedélyezés elhuzódása ne késleltesse, másrészt pedig hogy a müszakilag vagy gazdaságilag reménytkeltő alkalmazások közül is csak olyanok fejlesztésével foglalkozzunk, amelyekkel szemben egészségügyi aggály nem merülhet fel.

Mindebben szoros együttmüködést kivánunk létesiteni az egészségügyi hatóságokkal, illetve az egészségügyi tárca illetékes intézeteivel /Országos Élelmiszervizsgáló Tudományos Intézet/.

SZEMÉLYI FELTÉTELEK

E feladatok elvégzéséhez a kutatókapacitás lényegében rendelkezésre áll. Szakágazataink nagyrészében az atomenergia békés felhasználása területén nemzetközileg elismert kutatók müködnek, akik nem egy területen uttörő munkát végeztek. Közülük számosat vettek igénybe szakértőként külföldön elsősorban az élelmiszertárolás és tartósitás, növényvédelem, öntözés, állategészségügy terén.

Kutatóink felkészülését nagymértékben segitették a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség utján szervezett és egyéb ösztöndijas tanulmányutak.

A legtöbb tudományágban olyan felkészültségü vezető kutatóink vannak, hogy a képzés területén az eddigieknél nagyobb mértékben támaszkodhatunk a belső ösztöndijakra. Ilyen ösztöndijasok fogadására különösen a Központi Élelmiszeripari Kutató Intézet, a Növényvédelmi Kutató Intézet, Agrártudományi Egyetem, Gödöllő, Állatorvostudományi Egyetem, Országos Mezőgazdasági Minőségvizsgáló Intézet. Ilyen uton kivánjuk megoldani más intézményes képzési formák mellett, a kutatási középkáderek szakképzését is.
A képzésbe bekapcsolódik a MÉM Mérnök- és Vezetőtovábbképző Intézet, speciális tanfolyamok szervezésével. Emellett természetesen továbbra is számitunk lehetőség szerint évenkénti 3-4 külföldi ösztöndijra.

MŰSZEREINK, BERENDEZÉSEINK

Az izotópalkalmazással kapcsolatos kutatásokhoz szükséges alapmüszereket intézeteink az izotóplaboratórumuk megalakulásakor szerezték be, részben az Országos Atomenergia Bizottság segitségével. Ez a felszerelés sajnos tulnyomórészt elavult, és korszerü szinten való tartásához anyagi erőnk nem volt.

Laboratóriumaink felszereltsége az utóbbi időszakban nagymértékben polarizálódott. Amellett, hogy zömük nem tudott lépést tartani a fejlődéssel, néhány intézményünknél jelentős korszerüsitést tudtunk elérni.

A Központi Élelmiszeripari Kutató Intézet keretében, az Országos Atomenergia Bizottság és az Országos Müszaki Fejlesztési Bizottság támogatásával figyelemreméltó sugárforrásalapot létesitettünk.

Ez egy ^{137}cézium töltetü, 4ooo Ci aktivitásu, egy ^{6o}kobalt töltetü, 2o ooo Ci aktivitásu sugárforrásból laboratóriumi kisérletek céljaira, továbbá egy ^{6o}kobalt töltetü, 5o ooo Ci aktivitásu kisérleti üzemi sugárforrásból áll.

A kisérleti üzemi besugárzóról az eddigi tapasztalatok alapján megállapitható, hogy megfelel a vele szemben támasztott követelményeknek. Továbbfejlesztésére lehetőséget ad, hogy sugárvédelmi szempontból 5oo ooo Ci ^{6o}kobalt befogadására is alkalmas, valamint 27oo m^2 anyagelőkészitésre és tárolásra alkalmas területtel rendelkezik. Ez évben kiegészült folyamatos üzemelésre, illetve a kisérleti anyagok folyamatos kezelésére alkalmas szállitópályával. Az üzem kapacitását 1973-ban mintegy 3o ooo Ci-vel tervezzük növelni, majd fokozatosan 16o ooo Ci-re növeljük. Ily módon alkalmassá válna az OAB által tervezett, nagyüzemben megvalósitandó technológiákhoz szükséges paraméterek meghatározására. A kisérleti üzem ugyanis kellően rugalmas ahhoz, hogy sokféle igényt elégitsen ki, mig a nagyüzem a paraméterek variálására már nem alkalmas.

A felsorolt létesitmények bizonyos mértékig teljesiteni tudják a sugárzásos élelmiszertartósitás és -tárolás, a mutációs nemesités és a sterilhimtechnika besugárzási igényeit.

Ezeken tulmenően az atomtechnikai kutatások tervszerü folytatásához az alábbi berendezések beszerzését, illetve kutatóbázis létesitését tartjuk szükségesnek:

- mobil sugárforrás. A kutatási eredmények realizálása során nélkülözhetetlenné válnak egyes helyszini kezelések, igy termékenyülési, rovarkezelési, növénytermesztési kisérleteknél a vegetativ részek kezelése, stb. Mindehhez nélkülözhetetlenné vált egy, majd fokozatosan több mobil sugárforrás. Információink szerint baráti államokból is vásárolhatók. Beszerzési árukról nincs adatunk.

-Állattenyésztési kutatásaink során jelenleg csak kisállatokkal tudunk kisérletezni, mert nagy állatok kezelésére alkalmas sugárlaboratóriumunk nincs. Ilyennek a létesitésével az Állattenyésztési Kutató Intézetben csak tanulmányi szinten foglalkoztunk. Felépitését a következő tervidőszakra irányoztuk elő.

Nem kivánjuk itt részletesen felsorolni azokat a müszereket, különféle sugárzásmérőket, amelyek a kutatáshoz nélkülözhetetlenek. A tárca célja az, hogy az eddigi széleskörü laboratóriumi hálózat helyett szakágazatonként egy-egy bázisintézményt fejlesszen intenzivebben. Az erre irányuló koncepciót már kialakitottuk.

ÖSSZEFOGLALÁS

Az atomtechnikai kutatások terén elért eddigi eredményeinkből és a folyamatban levő kutatások helyzetéből megállapitható, hogy ezek a kutatások mind a mezőgazdaságban, mind az élelmiszeriparban a termelés szinvonalára, versenyképességünkre, a termelés gazdaságosságára nézve jó kilátásokkal kecsegtetnek. Ezekhez a kutatásokhoz az alapvető személyi felkészültséggel és felszereléssel is rendelkezünk. Erőfeszitéseinket - mint ahogy ezt a bevezetőben emlitettük - most már nem elsősorban a nyilt sugárforrások alkalmazására, hanem a sugárenergia közvetlen felhasználására kivánjuk összpontositani.

Az ionizáló sugárzás alkalmazása számos irányban a gyakorlati felhasználás, vagy az általános realizálást megelőző üzemi kisérletek szakaszába lépett. Az alkalmazás főbb területei:

- a gazdasági növényeinkben nem maradandó változást létrehozó, viszonylag kis sugárdózisokkal előidézett *stimuláció*, amellyel széles skálán érhetők el a termelés egyes mutatóit előnyösen befolyásoló változások;

- a különféle fajtákban létrehozott *mutáció*, mint az uj fajták előállitásának egyik igéretes módszere;

- a környezet terhelését csökkentő *autocid növényvédő módszerek*/sterilhim-technika/;

- a mezőgazdasági termények és élelmiszerek /takarmányok/ *tárolhatóságát növelő*, valamint *tartósitásukra* szolgáló besugárzási eljárások.

A felsoroltak mellett természetesen változatlanul fontosnak tartjuk a sugárzással előidézett egyéb jelenségek tanulmányozását is.

Mindehhez továbbra is igényt tartunk a főhatóságok, illetve országos hatáskörü szervek közremüködésére. Továbbra is számitunk az OMFB és az OAB támogatására, mégpedig az anyagi segitségen tulmenően információikra, tanulmányutjaira és ösztöndijaira.

Különösen szükséges az együttmüködés fokozása az egészségügyi hatóságokkal és magával az Egészségügyi Minisztériummal.

Az atomtechnika békés felhasználásában elért kutatási eredmények közül az élelmiszerek besugárzására irányuló kutatások előfeltétele az egészségügyi engedélyezés meggyorsitása. Különösen sürgető ez a burgonya, hagyma, füszerpaprika és füszerkeverékek kezelésénél. Általában célszerü lenne figyelembe venni az engedélyezési eljárások során a fejlett egészségügyi igazgatással rendelkező országok jogszabályait, és esetenkénti rendelkezéseit.

Ezen tulmenően - meghatározott körben - magunk is szolgáltatunk kisérleti adatokat az engedélyezés alátámasztására.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám.

NUKLEÁRIS LÉTESÍTMÉNYEK KÖRNYEZETELLENŐRZÉSÉNEK MODERN MÓDSZEREI*

Fehér I., Erdélyvári I.
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, Budapest

Az atomenergia békés felhasználásával járó kockázat. A környezetellenőrzés analitikai eljárásai. A KFKI környezetellenőrzési rendszere.

Современные методы контроля окружности ядерный сооружений
Фехер, И., Эрдельвари, И.

Риски мирного применения ядерной энергии. Аналитические методы контроля окружности. Система контроля Центрального института физических исследований ВАН

Up-to-Date Methods in the Environmental Control of Nuclear Establishments
Fehér, I., Erdélyvári, I.

Hazards of peaceful uses of atomic energy. Analytical methods of environmental control. Control system at the Central Research Institute of Physics of the Hungarian Academy of Sciences.

BEVEZETÉS

Hazánk energiahordozókban közismerten szegény. Rohamosan fejlődő iparunk és mezőgazdaságunk elektromos energiaigénye 2000-re az 1970 évi szintnek kereken tizszerese lesz. A hagyományos energiahordozók: a szén, olaj és földgáz importja a nagy távolság miatt egyre nagyobb gazdasági terhet jelent. Az atomenergia ezért hazánkban is rövidesen rentábilis energiaforrás lesz, és 2000-re az összes elektromos energia közel felét atomerőművek fogják szolgáltatni. Kormányunk az atomerőmű-programot elfogadta, s a Paksi Atomerőmű első egysége 1980-ban várhatóan üzembe lép. Az ipari fejlődés világszerte növeli a környezet szennyeződését. Indokolt, hogy egy olyan uj tipusu szennyezőforrásnál, mint az atomerőmű, a környezet védelmét és ellenőrzését kiemelt figyelemmel vizsgáljuk. Az atomerőművek hasznosságának és az atomerőművekből kibocsátott

*A MTA Radioanalitikai Munkabizottsága és a Magyar Kémikusok Egyesülete Radioanalitikai Szakcsoportja által Sopronban, 1972. november 1-4 között rendezett, "Környezetvédelem és radioaktiv etalonok" cimü ankéton elhangzott előadás

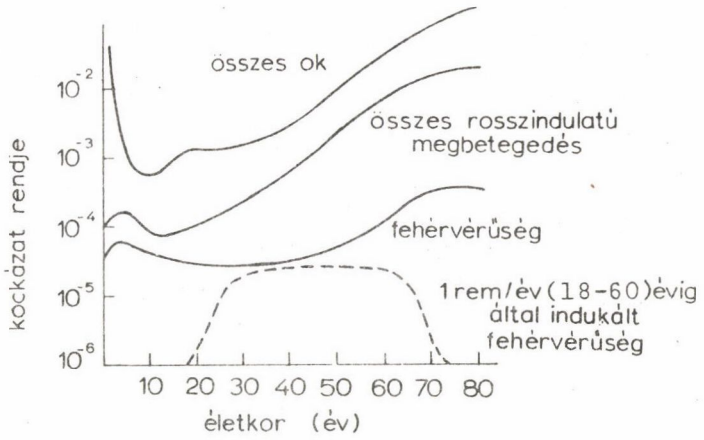
szennyeződésnek a lakosságra gyakorolt károsító hatásának, a sugárkárosodás kockázatának, egyensulyt kell tartania. A környezet védelmére és ellenőrzésére forditott erőket ezen tényezők alapján kell mérlegelni. Munkánkban az atomenergia békés alkalmazásának hasznosságával és az azzal járó kockázattal kapcsolatos ujabb szemléletről, az atomerőmüvek környezetellenőrzésének néhány uj módszeréről, és a KFKI környezetellenőrző rendszeréről szeretnénk beszámolni.

AZ ATOMENERGIA BÉKÉS FELHASZNÁLÁSÁNAK HASZNOSSÁGA ÉS KOCKÁZATA

Az atomenergia békés felhasználásának hasznosságát kvantitative meghatározni nehéz feladat, mivel jelenleg nincs olyan abszolut mértékszám, mely ezt jellemezné. Napjainkban az energiaforrások között az atomenergia még nem játszik kizárólagos szerepet, csupán arról beszélhetünk, hogy felhasználása adott helyen rentábilisabb a fosszilis energiahordozókból kapott energiánál. Az energiafelhasználás rohamosan növekedő üteme mellett várható, hogy az atomenergia, távlatban pedig a fuziós energiaforrás, döntően meghatározza az ipari fejlettség szintjét, és ezen keresztül a népesség jólétét. A hasznosság az energiaigény kielégitési fokával, mint közgazdasági mutatóval, egyszerüen leirhatóvá válik.

Az atomenergia békés felhasználásának kockázatán az ionizáló sugárzások népességre ható összes károsító hatásának vállalását értjük. Az akut sugárterhelések a megfelelően kialakitott védelemmel, gyakorlatilag megelőzhetők, az atomerőmüvek mai müszaki szinvonalán azonban nem zárható ki az üzemszerü radioizotóp-kibocsátás, és nem küszöbölhetők ki teljesen az üzemzavarok és a balesetek sem. Ezek során több-kevesebb radioaktiv izotóp szabadul ki, és a környezetben élőkre, külső és belső besugárzás révén, károsító hatást gyakorol. Ezt a kis sugárszinten létrejövő, nem specifikus szomatikus és genetikai károsodást legegyszerübben az egymillió lakosra évente eső halálozások számával irhatjuk le.

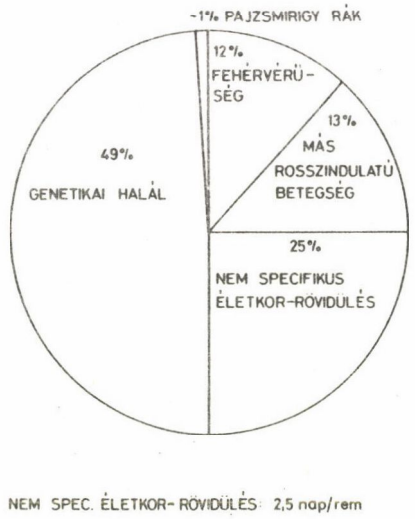
A kis sugárdózisok által kiváltott késői károsító hatások és a dózis összefüggése ma még csak közelitőleg ismert. Az atomfegyver-sujtotta japán lakosság körében végzett statisztikai elemzés azt mutatta, hogy a késői hatások gyakorisága, igy pl. a fehérvérüségé, közel lineárisan növekszik az elszenvedett dózissal, azonban 50-100 rem egésztest-besugárzás alatt, a kiváltott nem specifikus hatást a "háttér" ingadozása, tehát az adott betegség természetes gyakoriságának szórása elmossa. Ebben a dózistartományban a sugárzás által indukált megbetegedések gyakoriságát csak extrapolációval lehet becsülni. Az extrapolációhoz használható függvény alakja körül napjainkban nagy vita dul, az ajánlások közül az ICRP lineáris dózis-hatás görbéje a legelfogadhatóbb[1].



1. ábra

Különböző kockázatrendek életkorral való változására vonatkozó 1961-es angliai adatok

Az 1. ábra[2] a kockázat rendjének /a kockázat rendje a halálesetek évi hányada/ a fehérvérüség, a rosszindulatu megbetegedések és az összes ok életkortól való függését mutatja 1961-ben, Angliában. A "természetes ok", közte az ionizáló háttérsugárzás által kiváltott kockázat, mellette szaggatott görbe mutatja az 1 rem/év egésztest-sugárterhelés által kiváltott fehérvérüségi kockázatot. A 2. ábra kördiagramja az USA-ban a röntgendiagnosztikai sugárterhelés által kiváltott halálokok megoszlását szemlélteti[3]. A szomatikus és a genetikai halál közel azonos aránya mellett fontos szerep jut az életkor rövidülésének, melyre napjainkban a 2,5 nap/rem átlagértéket tartják a legjobb becslésnek. A halálokok gyakoriságának e megoszlása a környezetből az embert érő ionizáló sugárzásra, az eltérő dóziseloszlás miatt, csak közelitő támpontként használható.



2. ábra

A diagnosztikai röntgenterhelés által kiváltott halálesetek ok szerinti megoszlása

Az ICRP-nek a dózis és a hatás közti összefüggését elfogadva, a lakosság sugárterhelésének ismeretében, kiszámitható a 10^6 lakosra évente eső halálesetek száma. A 3. ábra K.Z. Morgan USA-ra vonatkozó becslését mutatja[3].

A hasznosság meghatározásánál láttuk, hogy az kvantitative nehezen irható le, és a népesség jólétével összefüggő közgazdasági fogalom. A kockázat, melyet az ionizáló sugárzás a népességre nézve jelent, az évenként egy millió lakosra eső halálesetek számával irható le. A hasznosság és kockázat nagyon különböző dimenzióju mennyiségek, tehát felvetődik a kérdés, beszélhetünk-e egyensulyukról. A társadalom, a jóléte érdekében, megkockáztathatja-e, hogy

10^6 LAKOS /ÉVRE ESŐ HALÁLESETEK		
TERM. HÁTTÉR	:	27
FALL-OUT	:	0,16
NUKL. IPAR	:	0,11 /0,85 mrem/év/
MÁS FORRÁSOK	:	0,05
ORVOSI DIAGN.	:	22
ORVOSI TERÁPIA	:	4,4
URÁN BÁNYA	:	0,05
KRITIKUSSÁGI BALESET	:	0,0016

USA /1970/ K.Z. MORGAN

3. ábra

A különféle eredetü ionizáló sugárzás okozta halálesetek gyakorisága az USA-ban

egyes tagjai az életükkel fizessenek ezért a jólétért? Nem kivánunk ezen a helyen a kérdés etikai részével foglalkozni, csupán utalunk rá, hogy az uj technikák bevezetése ősidők óta bizonyos kockázatot jelent a társadalom számára. Például a közuti forgalom sok áldozatot követel, ennek ellenére világszerte tovább növelik a gépkocsik számát, és ezzel párhuzamosan erőfeszitéseket tesznek a balesetek gyakoriságának csökkentésére. Az atomenergia hasznositásával járó kockázatot az egyéb kockázathoz hasonlóan, a társadalomnak el kell fogadnia, jóléte érdekében. Láttuk, hogy a "jólét", különösen napjainkban, inkább kvalitative irható le, ezért helyes, ha a kockázatot első közelitésben más tevékenységgel járó kockázattal hasonlitjuk össze, s arra törekszünk, hogy az atomenergia bevezetése ne növelje, sőt, ha müszakilag lehetséges, csökkentse az energiatermeléssel kapcsolatos kockázatot.

A 4. ábrán az NSZK és hazánk 1970 évi halálozási statisztikájának jellemző töredéke látható[4,5]. Hazánkban a lakosság sugárterhelésére csak részadatok ismertek, ezért nem adható meg a különböző sugárterhelésből várható halálozások száma, azonban ez, a természetes és orvosi diagnosztikai sugárterhelés

A halálesetek száma

	NSzK 1970 10^6 LAKOS/ÉV-re (WACHSMAN 1972)	MAGYARORSZÁG 1970 10^6 LAKOS/ÉV-re (ORSZ. STAT. HIV. 1971)
ÖSSZ. HALÁLOZÁS	13000	12200
RÁKOS ESETEK	2000	2200
BALESETEK	500	560
EBBŐL KÖZL.	250	225
ÖNGYILKOSSÁG	200	359
TERM. TERHELÉS	25	nincs adat
ORVOSI DIAGN. RTG.	8	
NUKLEÁRIS IPAR	0,02	

4. ábra

Néhány halálokra vonatkozó statisztika az NSZK-ból és Magyarországról 1970-ből

tekintetében, az NSZK adatokhoz közeláll. Ha elfogadjuk a lakosság megengedhető maximális sugárterhelésére vonatkozó ICRP-ajánlást: az 5 rem/30 év-et, ugy a természetes háttérsugárzásból eredő mortalitás megkétszereződésére lehet számitani. A maximálisan 25 haláleset/év.millió lakos számot célszerü összevetni egyéb kockázatokkal. Ez az érték alig 10%-a a közlekedési balesetekből származó haláleseteknek. Tanulságos az öngyilkosságok gyakoriságával való összevetés. Hazánkra vonatkoztatva, ha a lakosság valamennyi tagja hosszu időn át elszenvedné az ICRP által ajánlott megengedhető maximális terhelést, az ebből származó halálesetek száma alig 7% -a lenne az öngyilkosságok számának. A balesetekkel történő összevetés azt mutatja, hogy az ipar, a bányászat és a mezőgazdaság területén hazánkban, 1970-ben egy millió lakosra 37 halálos baleset történt, mig az otthon történt halálos balesetek száma 217/millió lakos.

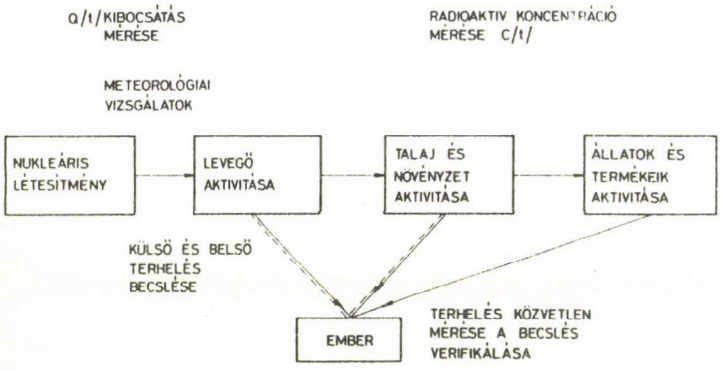
Ezen számok tükrében megállapitható, hogy az atomenergia békés felhasználásának kockázata az egyéb veszélyforrásokénál nem nagyobb, és a társadalomnak az energiaszükséglet kielégitésére e kockázatot vállalnia kell. Az ICRP által ajánlott megengedhető maximális terheléstől /170 mrem/év/ napjainkban még nagyon távol vagyunk. Mint a 3. ábrán látható, az USA-ban is mindössze 0,85 mrem/év-re becsülik a lakosság nukleáris ipartól eredő sugárterhelését. Az atomerőművek biztonságossága évről-évre növekszik, a radioaktiv izotópok üzemszerü kibocsátása pedig olyan kicsi, hogy dózisjáruléka néhány mrem/évnél nem több, és a környezetben való kimutatása komoly méréstechnikai probléma.

NUKLEÁRIS LÉTESÍTMÉNYEK KÖRNYEZETELLENŐRZÉSE

Az analizis célja

Nukleáris létesitmények, melyeken elsősorban az atomerőműveket értjük, biztonságos üzemeltetéséhez, a fentiek szerint, elengedethetetlen a környezet ellenőrzése. Az 5. ábrán bemutatjuk, hogy egy nukleáris létesitménynél, levegőbe történő radioizotóp-kibocsátás esetén, milyen paramétereket kell mérni. Lényegében hasonló a blokkdiagramja a felszini vizekbe történő radioaktiv hulladékkibocsájtás ellenőrzésének, azonban jelentősége általában kisebb, mint a levegőbe történő kibocsájtásnak. Az analitikus szemszögéből nézve mérni kell:

- a kibocsátás mértékét;
- a diszperziót megszabó tényezőket, levegő esetében a meteorológiai adatokat;
- a külső sugárterhelést;
- a levegő, talaj, növényzet és az állati termékek kvalitativ és kvantitativ radioaktiv koncentrációját /majd azokból számitani a belső terhelést/;
- a belső terhelést egyes személyeken, /ellenőrizve a koncentrációkból számitott terhelés értékét/.



5. ábra

Atomerőműből a levegőbe történő radioizotóp-kibocsátás ellenőrzésének vázlata

Az analizisekkel szemben támasztott követelmények

Az analitikai módszereket kettős követelménycsoport alapján kell megválasztani. Egyik a mérendő szint, másik a beavatkozási lehetőség követelménye. Természetesen a kettő szorosan összefügg.

mérendő szint	beavatkozás
üzemszerü kibocsátás	- - - - - - - - - - - - - - - - passziv
üzemzavari kibocsátás /2-3 évente/	- - - - - - - - - - - - - - - - aktiv
baleseti kibocsátás /igen kis valószinüségü/	

A mérendő szintek, 1000 MW atomerőmüre vonatkoztatva, üzemszerü kibocsátásnál: $\ll$ 5mR/év külső γ, $\ll$ 0,01 pCi/m^3 koncentráció levegőben és $\ll$ 0,1 pCi/g koncentráció vizben, növényzetben, élelmiszerekben. Ezek a szintek a természetes radioaktiv háttér 10%-a alatt vannak, ezért a mérésük csak nagyérzékenységü és diszkrimináló eljárásokkal lehetséges. Ezek azonban időigényesek, s a sugárterhelés utólagos becslésére szoritkoznak, beavatkozásra nem adnak módot - arra ilyen kis szinteknél természetesen nincs is szükség - ezért ezek az analitikai eljárások *passziv* jellegüek.

Az üzemzavari állapotban a várható szintek egy-két nagyságrenddel nagyobbak, mig balesetnél további két-három nagyságrenddel nagyobb évi dózisra, illetve ennél is nagyobb pillanatnyi koncentrációkra számithatunk. Ezekben az esetekben az analitikai módszereknek gyorsnak kell lenniök, hogy támpontot adjanak a szükséges intézkedésekre, pl. a környék esetleges kiüritésére. E követelményeket kielégitő fizikai módszerekkel dolgozó és számológépes kiértékelést alkalmazó analitikai rendszer a beavatkozás szempontjából *aktivnak* nevezhető.

Néhány uj analitikai irányzat a passziv és az aktiv ellenőrzésnél

A *passziv külső* γ-háttér meghatározási módszereként ujabban elterjedten alkalmazzák a termolumineszcens mérési eljárást. Előnye, hogy az intergráldózis értékét gyakorlatilag fading nélkül méri, és olcsóságánál fogva az atomerőmü környezetében akár több száz mérőpont is létesithető az izodózis görbék felvételére.

A *passziv analitikai* koncentrációmérő eljárások első lépése a mérendő mintákból a meghatározni kivánt radioaktiv izotóp koncentrálása. A koncentrálásra leggyakrabban alkalmazott fizikai-kémiai módszerek a következők:

- lecsapás,
- kromatográfia,
- folyadék-folyadék extrakció.

A koncentrálás után kapott preparátum aktivitását

- kishátterü β-számlálóval,
- nagyméretü üreges NaI/Tl/ γ-spektrométerrel,
- Ge/Li/ γ-spektrométerrel szokás meghatározni.

A két utóbbi módszerrel történő mérés automatizálható, az adatok gyüjtésére és feldolgozására kis számológépet használnak.

Az *aktiv* külső γ-szint-mérő rendszer detektoraként nagy felületü NaI/Tl/, ionizációs kamra, vagy halogén töltésü GM cső szolgál. A jeleket az atomerőmü környezetében telepitett állomásokról kábelen vagy rádió utján juttatják a mérőközpontba, ahol az adatgyüjtő, jegyzőkönyvező kis számológép összehasonlitja a mért értéket a kibocsátásból számitott várható értékkel.

Üzemzavari, illetve baleseti állapotban *mozgó* laboratóriumok nyujtják a legnagyobb segitséget. A külső γ-szint és a levegőszennyezettség gyors meghatározására a helikopterre szerelt nagyérzékenységü szcintillációs számlálók, mig a környező felületek, növény- és talajminták szennyezettségének gyors feltérképezésére az autóra szerelt mozgó laboratórium felületszennyezettség-mérő mószerei és γ-spektrométerei adnak lehetőséget.

Az aktiv rendszerben általában nem használnak kémiai koncentrálási eljárást, mivel a mérendő szintek lehetővé teszik a közvetlen γ-spektrometriás mérést és az adatok számológéppel történő gyors kiértékelését.

Összefoglalás

Az atomerőmüvek környezetellenőrző rendszereinél használt uj módszerek fő jellemvonása egyrészt a nagy érzékenység, másrészt az adatok gyors, az esetek nagy részében számológéppel történő feldolgozása, a lakosság fokozottabb ellenőrzését szolgáló, gyors dózisterhelési prognózis készitésére.

A KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZET KÖRNYEZETELLENŐRZŐ HÁLÓZATA

A KFKI-ban folyó sugárveszélyes munkák ellenőrzésére kombinált, aktiv és passziv ellenőrzési rendszert dolgoztunk ki. Az ellenőrző hálózat a rutin feladatok ellátása mellett modellként szolgálhat az atomerőmü környezetellenőrző hálózatának kidolgozásához.

Környezetellenőrző rendszerünk lehetővé teszi annak meghatározását, hogy az intézetben folyó sugárveszélyes munkák mekkora veszélyt jelentenek e környezetre, s gyors információt szolgáltat a sugárveszélyes munkafolyamatoknál fellépő esetleges rendellenességekről.

A KFKI-ban a környezet sugárvédelmi ellenőrzése kiterjed:

- a légtér radioaeroszol formáju szennyezettségének vizsgálatára Intézeten belül és kivül,
- a közcsatornába távozó szennyviz radioaktivitásának mérésére,
- az Intézet területének különböző pontjain a γ-dózisintenzitás szintjének folyamatos mérésére,
- a legfontosabb meteorológiai adatok mérésére.

A légtér radioaeroszol szennyezettségének mérésére 11 aeroszol- és fall-out mintavevő állomást üzemeltetünk folyamatosan. 6 állomást az Intézet területén, 5-öt pedig az uralkodó széljárás irányában, az Intézettől 2-18 km távolságon helyeztünk el. A mintavételi periódus az aeroszolmintáknál 24 óra, a fall-out mintáknál 1 hét.

Az aeroszol és fall-out mintavevő állomások üzemeltetése mellett az Intézet központi helyén éjjel-nappal folyamatos üzemben müködik egy regisztrálóval és szinttullépést jelzővel ellátott aeroszolminta-vevő és mérő berendezést.

A légtér radioaeroszol-tartalmának vizsgálatához fontos meteorológiai adatokat állandóan üzemeltetett szélirány- és szélsebességmérő és regisztráló müszer, továbbá hagyományos felszerelésü meteorológiai állomás szolgáltatja.

A sugárveszélyes munkahelyekről kikerülő szennyviz kettős ellenőrzés után hagyja el az Intézet területét[6]. Az első ellenőrzésre, a laboratóriumok melletti gyüjtő ellenőrző aknákból való kibocsátás előtt, a másodikra pedig a területhatár közelében létesitett, távmüködtetésü, folyamatos szennyvíz-aktivitás-mérő és mintavevő állomáson kerül sor.

Ez utóbbi lehetővé teszi az eltávozó szennyviz β- és γ-aktivitása koncentrációjának folyamatos mérését és regisztrálását; a β- vagy a γ-aktivitás koncentrációja növekedésekor az automatikus és kézi kapcsolásu mintavételt; a "24 órás átlag" mintavételt; az eltávozó szennyviz mennyiségének folyamatos mérését és regisztrálását.

A fajlagos γ-aktivitás mérésére lineáris ratemeterhez csatlakoztatott szcintillációs, a fajlagos β-aktivitás méréséhez pedig végablakos GM csöves detektort használunk. A ratemeterek jelzését pontiró regisztrálja. Amikor a fajlagos γ- vagy β-aktivitás a szintjelzőn beállitott szintet eléri, a berendezés figyelmeztető hang- és fényjelzést ad, ezzel egyidőben automatikusan mintát vesz. A radioaktiv szennyeződést képező izotópok azonositása a minta felhasználásával, vagy - γ-aktiv szennyezők esetén - a szcintillációs detektornak közvetlenül sokcsatornás amplitudóanalizátorhoz való csatlakozásával gyorsan elvégezhető. A berendezéssel mérhető legkisebb koncentráció ^{131}I, illetve ^{137}Cs izotópok esetén kb. 1.10^{-5} μCi/ml.

Az állandó mintavevő percenként 6-szor átlagmintát vesz. A naponkénti átlagmintából bepárolással szárazmintát készitünk, s a mért β-aktivitásból az átlagkoncentrációt, és, az eltávozó szennyvizmennyiség ismeretében, a kibocsátott összegaktivitást is meghatározzuk. E mellett folyadékszcintillációs eljárással rendszeresen mérjük az átlagminta triciumkoncentrációját.

Az eltávozó szennyviz mennyiségének a mérésére izotópos rétegvastagságmérőt használunk.

A γ-dózisintenzitás szintjét az Intézet területén 6 egy GM-csöves és 5 négy GM-csöves, fix telepitésü detektorral mérjük. Az egy GM-csöves detektorok logaritmikus, a négy GM-csövesek pedig lineáris ratemeterekhez csatlakoznak. A sugárveszélyes munkahelyek közelében elhelyezett detektorokat kábel köti össze a sugárvédelmi szolgálat ügyeleti helyiségében lévő mérő és regisztráló müszerekkel, amelyek az előre beállitott dózisintenzitás tullépésekor hang- és fényjelzéssel riasztják az ügyeletet.

A mérőhálózat elektronikus egységeit Bolla Dezső tervezte és készitette, a mechanikai egységeket pedig Mészáros István tervezte.

A környezetből származó különböző minták mérésére /levegő, talaj, fallout, szennyviz, stb./ kis méretü, érzékeny γ-spektrometriás módszert használunk. A mérési eredményeket számitógéppel értékeljük[7].

IRODALOM

1. ICRP Publication 14. Pergamon Press, London, 1969, 13
2. ICRP Publication 8. Pergamon Press, London, 1966, 59
3. Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment, IAEA, 1971 14 és 15
4. *F. Wachsman*, A lakosság sugérterhelésének növekedése mesterséges sugárforrások hatására és ennek sugárvédelmi jelentősége, VI.M.Radiol.Kongr. előadása, 1972

5. Demográfiai évkönyv 1970, Központi Statisztikai Hivatal 1971
6. *Erdélyvári I.*, A Központi Fizikai Kutató Intézetből eltávozó szennyviz radioaktiv szennyezettségének ellenőrzése. KFKI Közl. 17 /1969/ 223
7. *Kovács M., Beleznay Fné, Andrási A., Erdélyvári I.*, Környezeti minták radioaktivitásának γ-spektrometriás mérése és a mérési eredmények számitógépes analizise, Izotóptechnika 17 /1973/

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám.

KÜLÖNFÉLE FEHÉRJÉK JÓDIZOTÓPOKKAL VALÓ JELZÉSÉNEK PROBLÉMÁI

Kocsár L., Merétey K., Kutas V.
Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

A kémiai és az elektrolitikus jelzés előnyei és hátrányai. A szabad jód eltávolitása palládiumos kezeléssel és a módszer vizsgálata.

Проблемы мечения различных белков с изотопами йода
Кочар, Л., Меретеи, К., Куташ, В.

Преимущества и невыгоды химического и электролитического мечений. Устранение свободного йода палладиам, и проверка этого матода

Problems in Labelling of Different Albumines with Iodine Isotopes
Kocsár, L., Merétey, K., Kutas, V.

Advantages and disadvantages of chemical and electrolytic labelling. Removal of free iodine with palladium, and the control of this method

Ismeretes, hogy a jelzett fehérjék alkalmazási területe rohamosan bővül. Mind gyakrabban használjuk a jelzett fehérjéket nemcsak a kisérleti kutatásban, hanem a klinikai orvosi diagnosztikában, sőt terápiában is. A felhasználás sokrétüsége szükségszerüen azt jelenti, hogy a jelzett fehérjékre jellemző paramétereket nem lehet egységesen megállapitani. A minőségi jellemzők a célnak megfelelően változhatnak, bizonyos határokon belül. Különösen szigoru korlátozást jelent az in vivo felhasználás igénye. Ilyen esetekben bizonyos, szigoruan előirt normáktól nem lehet eltekinteni, és az orvosi lelkiismeret hangsulyozottan kerül előtérbe. A kérdést bonyolitja az a tény, hogy a radiofarmakonokkal szemben felállitott követelményeket - ellentétben más farmakonokkal - a legritkább esetben tekinthetjük véglegesnek. Ennek oka egyrészt az az állandó törekvés, hogy az emberi szervezetet minél kisebb sugárterhelésnek tegyük ki, másrészt az izotópgyártás technológiájának fejlődése, amely a jogos igény kielégitését gyakran teszi lehetővé.

A szokásos kritériumokat csak felsorolva érintjük.

1. Szükséges, hogy a molekulák jelzés után is megtartsák eredeti kémiai,

fizikai kémiai és biológiai tulajdonságukat.

2. A jelzés egyenletes és tartós legyen.

3. A fajlagos aktivitás feleljen meg a szükségletnek.

A jódizotópokkal való fehérjejelzési módszereket két nagy csoportra oszthatjuk:

a/ kémiai jelzések

b/ elektrolitikus jelzések

E kétfajta jelzési módszer kritikáját saját, több mint 15 éves tapasztalatunk alapján az alábbiakban ismertetjük.

A felsorolt kritériumoknak a kémiai és elektrolitikus jelzés nem egyformán tud eleget tenni. Mindegyiknek megvan a maga előnye és hátránya.

A kémiai módszereknél durva pH-behatásokkal kell operálni, az erősen savanyu 1-2 értéktől a 9-10-es pH értékig. A hidrogénion-koncentráció e nagyfoku változása egy müvelet folyamán károsithatja a fehérjéket. Ha ehhez még azt is hozzászámitjuk, hogy kémiai jelzéseknél oxidáló ágenseket is kell egyidejüleg alkalmazni, nyilvánvalóvá válik, hogy különösen a felület-oxidábilis fehérjék könnyen denaturálódhatnak, még akkor is, ha a müveletet gyorsan végezzük. Éppen ezért a jelzési müveletek során különös gonddal, immunológiai módszerekkel ellenőrizzük a jelzett fehérjék nativ voltát.

Sok előnye van az *elektrolitikus jelzésnek*.

Az a tény, hogy nincs szükség oxidáló ágensre, hogy a művelet fiziológiás körülmények között és igen jó hatásfokkal végezhető, olyan előnyt jelent, amely semmi más módszerrel nem biztositható. Éppen ezért az immunológus különösen értékelheti ezt az eljárást.

Hogy a kémiai és az elektrolitikus módszer közül melyik kiméli jobban a fehérjét, olymódon vizsgáltuk meg, hogy tanulmányoztuk immunológiai in vitro reakciókban való viselkedésüket jelzés előtt és jelzés után 1 nap, majd 1, 2, 3 és 4 hét mulva.

Az elektrolitikus jódozás kb. 30 perces beavatkozást jelent. Saját eredményeink szerint a mi rendszerünkben 5-10 mCi/mg fajlagos aktivitást tudunk elérni. Ellenőrző vizsgálataink szerint jelzett fehérjénk sohasem denaturálódott. Ezért ezek a radiofehérjék immunológiai és anyagcsere-vizsgálatokra is alkalmasak. Az egyenletes jódozás előnyös lehet a makroaggregátum előállitásához is, a fent emlitett fajlagos aktivitás pedig lehetővé tette, hogy az Amershamben gyártottnál nagyobb (1,4-2,0 mCi/mg) fajlagos aktivitásu makroaggregátumot tudjunk előállitani.

Az elektrolitikus jódozás szinte egyetlen negativumának tekinthetjük az aránylag hosszu jelzési időt. Ez teszi alkalmatlanná olyan fehérjék jelzésére, amelyeket az un. radio-immunassaykben kivánunk felhasználni. Ilyen esetek-

ben ugyanis az eddigieknél 3-5 nagyságrenddel nagyobb jódizotóp-mennyiség az elekrolitikus rendszerben radiolitikus bomlást és denaturációt okozhat. Ilyen célokra jobban beválnak az ujabb kémiai módszerek, amelyeknél a kémiai eljárás csak perceket vesz igénybe.

Egy másik alapvető követelmény, hogy a fehérjéhez nem kötött, szabad jód mennyisége ne haladja meg a 4%-ot.

Hangsulyozni szeretném, hogy az un. szabadjód-változások messze nem olyan jelentősek, mint az előbb emlitett nativitási feltételek. Mégis, az 5%-ot meghaladó értékek bizonyos humándiagnosztikai vizsgálatok pontosságát zavarhatják.

A fehérjéhez nem kötött jód eltávolitására eddig az ioncserélő gyanták, a dializis és a sephadexes kezelés voltak használatosak.

Elsőként magyar szerzők, Jász Árpád és Tóth Géza mutattak rá arra, hogy a palládiumkezelés alkalmas a szabad jód eltávolitására fehérjetartalmu rendszerekben.

Mi megismételtük Jász és Tóth kisérleteit, és eredményüket teljes mértékben megerősitettük. Több kérdést kellett azonban tisztáznunk, mielőtt véglegesen állást foglalhattunk volna a palládium alkalmazhatóságát illetően.

Ezek: 1. milyen palládiumos előkezelés szükséges az optimális hatásfok elérésére?

2. Van-e befolyása a palládiumos kezelésnek a fehérje antigénstrukturájára?

3. Annak ellenére, hogy a palládium nemesfém, képez-e komplexet a fehérjével, és van-e esetleg toxikus hatása?

Az antigenitásra gyakorolt hatást ugy vizsgáltuk, hogy fehérjeoldatunkat 3-10-szer egymásután palládiumos kezelésnek vetettük alá, és az antigénstrukturában mutatkozó esetleges változást immun-elektroforézisos módszerrel tanulmányoztuk /1. táblázat/.

1. táblázat

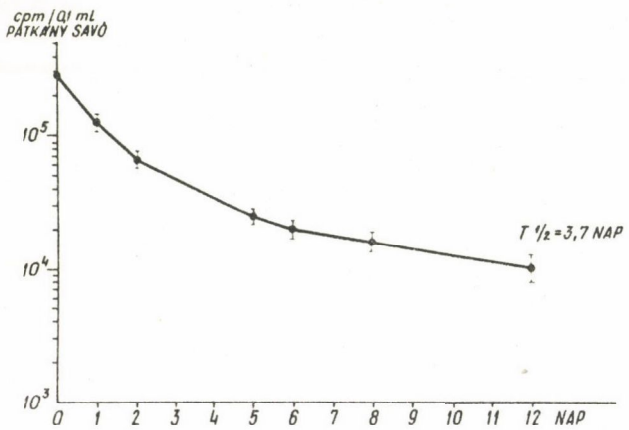
Palládiumos kezelés hatása a HSA nativitására

Kezelés		Vizsgált minták száma	Denaturáció
Palládiumos kezelés	1x	6	-
	2x	3	-
	3x	3	-
	4x	2	-
	5x	1	-
Ioncsere+ palládiumos kezelés 1x		7	-

Eredményeink szerint a palládiumos kezelés a fehérje antigenitását nem befolyásolta.

A jelzett fehérjék nativitásának ellenőrzésére, a később ismertetendő immunológiai eljárások mellett, a biológiai felezési idő meghatározása ad legmegbizhatóbb eredményt.

Kisérletünkben a ^{131}I-dal jelzett és palládiummal kezelt homológ patkány IgG frakció biológiai felezési idejét tanulmányoztuk /1. ábra/. Az 1. ábrán három kisérlet átlagértékét mutatjuk be. Látható, hogy a 3,7 napos T_{eff} érték teljesen megfelel az irodalom adatainak. Ugyanezt a vizsgálatot még további husz kisérletben végeztük el, hasonló eredménnyel. Ezek alapján állithatjuk, hogy a palládiummal kezelt fehérjék még anyagcsere-vizsgálatokra is alkalmasak.



1. ábra

^{131}I-dal jelzett patkány IgG anyagcseréje

Toxicitási vizsgálatot 70 egéren, ártalmatlansági próbát pedig 48 tengerimalacon végeztünk.

Mind a hideg, mind a jódizotóppal jelzett és palládiummal kezelt fehérjeoldatból egereknek 0,1 ml-t, tengerimalacnak 0,2 ml-t adtunk intraperitoneálisan. Az állatok között spontán elhullás nem volt. 48-72 óra mulva az állatokat felboncoltuk, és szerveiket megvizsgáltuk. Megállapitottuk, hogy a palládiummal kezelt fehérje beadása után egyetlen állatnál sem találtunk kórbonctani elváltozást.

Ezen kisérletsorozat alapján állithatjuk, hogy a palládiumos kezelés a fehérjét nem kárositja és nem toxikus.

A fehérje nativitása a jelzett fehérjék klinikai alkalmazhatóságának legfontosabb fokmérője. Döntő szempont, hogy a fehérje ne változzék meg jelzés hatására oly mértékben, hogy az élő szervezet eltávolitsa mint idegen, káros anyagot. Ezeket a követelményeket általában az anyagcsere-vizsgálatoknál szokták fontosnak itélni, pedig a cirkulográfiás alkalmazásnál is gondot kell forditani a jelzett fehérje nativ állapotára. A vizsgálat eredményét befolyásolhatja a jelzett fehérje denaturált volta.

A fenti meggondolások alapján immunológiai módszerekkel követtük nyomon a legáltalánosabban alkalmazott jelzési módszer, a jódozás hatását a fehérje nativitására. A vizsgálatokat zömmel ^{131}I-dal jelzett HSA-val végeztük.

Esetenként ^{125}I-dal, továbbá patkányglobulinnal is.

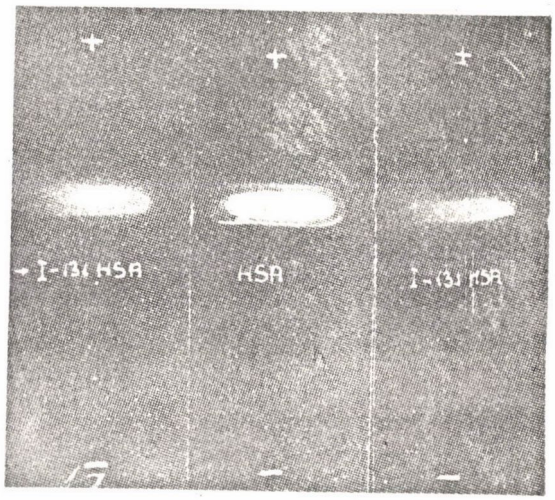
Az ellenőrzésre a következő eljárásokat alkalmaztuk:

1. agarelektroforézis;
2. immunoelektroforézis Scheidegger szerint,
3. immunoelektroforézis Ossermann szerint.

A módszer illusztrálására néhány preparátumunk képét mutatjuk be.

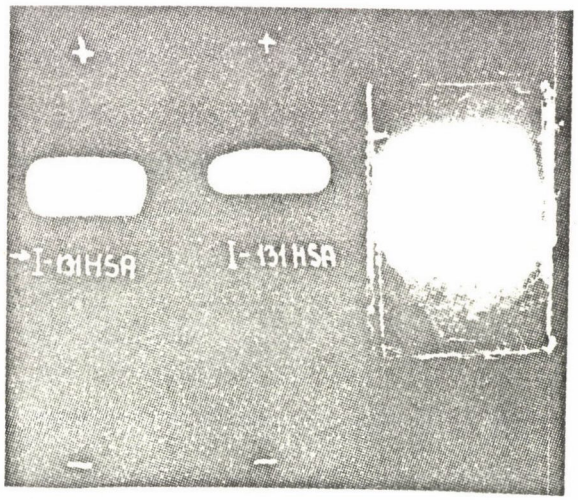
Sem a ^{125}I-dal, sem a ^{131}I-dal való jelzés nem befolyásolja az elektroforetikus vándorlás mértékét.

A 2. ábra agarelektroforézis képe. Több mint 4 hétig tárolt, elektrolitikusan jelzett preparátum vándorlását viszonyitottuk jelzetlen HSA-hoz. Megállapitható, hogy még ebben az esetben sem volt különbség a preparátum vándorlásában.



2. ábra

Elektrolitikusan jelzett és jelzetlen HSA-készitmény vándorlásának agarelektroforézises képe



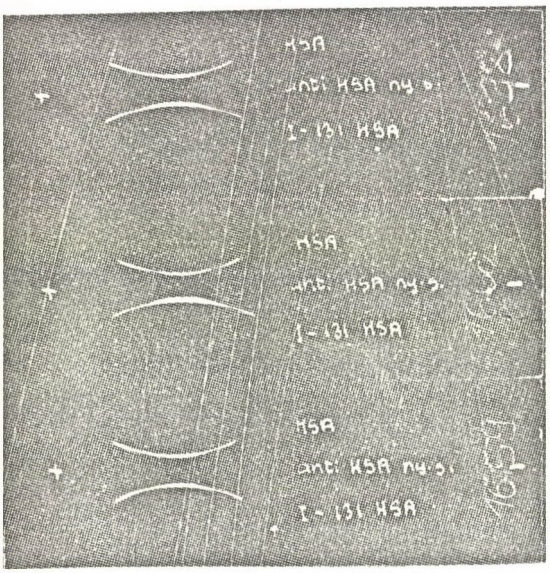
3. ábra

Kémiailag jezett HSA-készitmény vándorlásának agaelektroforézises képe

A 3. ábrán kémiai módszerrel jelzett, hosszu ideig tárolt preparátum agarelektroforézises képe látható. A vándorlás lassult. Ilyen esetben heterogénebb vándorlás is észlelhető, ami arra utal, hogy a denaturáció csak a molekulák egy részére vonatkozik. Ilyenkor autoradiográfiás vizsgálatnál azt találjuk, hogy a denaturáltabb, lassabban vándorló fehérjefrakciónak megfelelően nagyobb a radioaktivitás, tehát az erősebben jelzett molekulák fokozott denaturációs készséget mutattak.

A 4. ábrán ^{131}I-dal jelzett és jelzetlen HSA immunelektroforézises képe látható. Az ivek alakja, helyzete megegyezik, a preparátumok nativnak tekinthetők.

A HSA antigenitásának olyan változása, mely csak a molekula egyes antigéndeterminánsaira vonatkozik, Ossermann módszerével vizsgálható, ezért a



4. ábra

Jelzett és jelzetlen HSA immuno-elektroforézises képe

jelzett preparátumokat ezzel a módszerrel is rendszeresen megvizsgáltuk.

A bemutatott módszerrel 4 év alatt 100 jelzett HSA-preparátumot vizsgáltunk meg. A munkában szerzett tapasztalatokat és megfigyeléseket az alábbiakban foglaljuk össze.

A jelzésekhez alapanyagként csak emberi gyógyászati célra alkalmas humán szérum albumin oldat használható.

A jelzési folyamat közben, egyes fázisaiban, nem végezhettünk vizsgálatokat, mivel a jelenlevő izotóp nagy aktivitása a vizsgálat elvégzését laboratóriumi körülményeink között nehézzé tette volna. Igy a különféle módszerekkel jelzett HSA preparátumokat Amberlite ioncserélővel végzett szabadjód-mentesitás után hasonlitottuk össze /2. táblázat/. Megállapitottuk, hogy a régebbi, oxidációs kémiai jelzés után előfordult, hogy a jelzett preparátum denaturáltnak mutatkozott, ezzel szemben a jódmonokloridos jelzés után ilyen denaturációt nem észleltünk. Igen jó eredményeket adott az elektrolitikus jódozás.

A különféle preparátumokat a jelzés utáni későbbi időpontban vizsgálva kitünt, hogy a jelzés utáni naphoz viszonyitva + 4°C-on való tárolás során fokozódott a denaturált preparátumok száma, illetve a denaturáció foka. Bár elektrolitikus jelzéssel előállitott preparátumok közül csak keveset vizsgáltunk, későbbi időpontban ezek között denaturációt nem észleltünk.

2. táblázat

Különféle módszerekkel jelzett humán szérum albumin nativitásának vizsgálata

Vizsgálat időpontja	Jelzés módja	Vizsgált minták száma	Denaturált minták száma				
			+	++	+++	++++	összesen
jelzést követő nap	KI-nitrines	28	5	1	-	-	6
	ICl-os	11	-	-	-	-	0
	Elektrolitikus	61 → ^{131}I 53	2	-	-	-	2
		61 → ^{125}I 8	-	-	-	-	0
2-4 héttel a jelzés után	KI-os	28	1	4	5	1	11
	ICl-os	4	1	-	1	-	2
	Elektrolitikus	4	-	-	-	-	0

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám

NAGYENERGIÁJU SUGÁRZÁS ALKALMAZÁSA OLDHATATLAN ENZIMKÉSZITMÉNYEK ELŐÁLLITÁSÁBAN

Dobó J.
Müanyagipari Kutató Intézet, Budapest

Enzimek oldhatatlan vázhoz való rögzitése polimer géllel, sugárzással. Az enzimek aktivitásának vizsgálata

Применение мощного излучения в изготовлении нерастворимых препаратов энзимов
Добо, Я.

Привязывание энзимов к нерастворимому остову геля-полимера облучением. Определение энзимной активности.

Preparation of Insoluble Enzymes by High-Energy Irradiation
Dobó, J.

A fixation of enzymes to az insoluble grid of polymer gel by irradiation. Determination of enzymatic activity.

Az élő szervezetek bonyolult kémiáját milliónyi enzim irányitja, szabályozza. Az enzimek összetételükre nézve fehérjék, hatásuk pedig hasonló a vegyipar katalizátoraihoz: gyorsitják a kémiai reakciókat, megszabják irányukat, anélkül, hogy maguk ebben a folyamatban változást szenvednének. A vegyipar katalizátoraival szemben az enzimek két előnyös tulajdonsággal rendelkeznek: enyhe körülmények között - pl. 37 C^{o} körüli hőmérsékleten és közömbös oldatokban - is nagy reakciósebességet biztositanak, és a hatásuk rendkivül fajlagos: némely enzim csupán egyetlen reakció katalizálására képes.

Ezeket az előnyös tulajdonságokat a vegyipar már régóta felhasználja [1,2]. Az enzimes reakciók vegyipari alkalmazása azonban ellentmondásos problémákat vet fel: ha a reakció katalizálására magukat a mikroorganizmusokat /pl. élesztősejteket, penészgombákat, baktériumokat/ használjuk, bizonyos mértékig elveszitjük a fajlagosság nyujtotta előnyt. Hiszen minden mikroorganizmusban sokezer enzim van, amelyek mellékreakciókat, másodlagos átalakulá-

sokat katalizálhatnak. Ha viszont izolált vizben oldott enzimkészitményekkel dolgozunk, elveszitjük a heterogén katalizátorok főelőnyét, az ismételt felhasználhatóságot: mi több, az oldott enzim szennyezi a terméket.

A MEGKÖTÖTT ENZIMEK

Ezért váltott ki rendkivüli érdeklődést nemcsak a kémikusok, hanem a vegyésztechnológusok körében is egy uj technika: az enzimek oldhatatlan vázhoz való rögzitése [3] . Az oldhatatlan váz anyaga lehet szervetlen /pl. üveg/ felület vagy polimer gél. Maga a rögzités lényegében kétféleképpen történhet:

kovalens kötéssel, az enzimmolekulának olyan helyein, amelyek a katalitikusan aktiv helytől lehetőleg távol esnek;

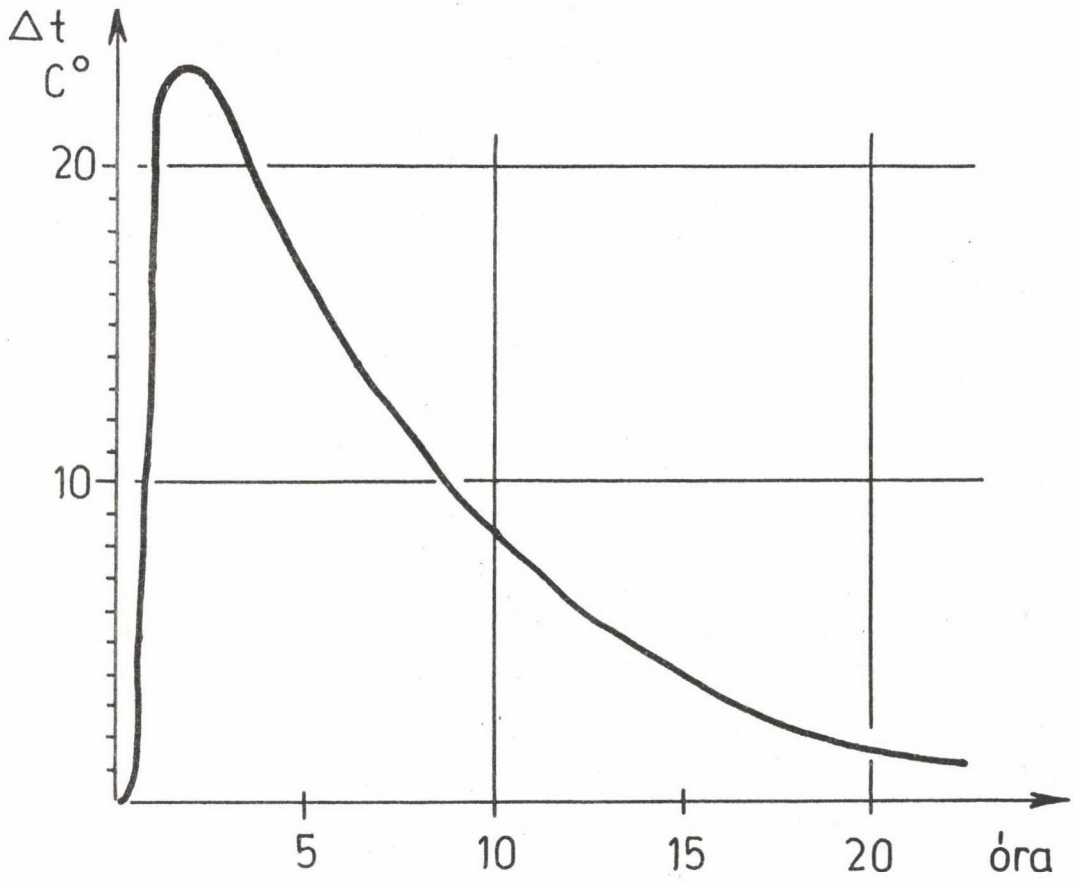
vagy pedig olymódon, hogy az enzim jelenlétében polimer hálót alakitunk ki, valamely térhálósodásra, gélesedésre képes, vizoldható monomer vagy monomerkeverék polimerizálása utján; igy az enzimet, kémiai módositás nélkül, a hálóba bezárjuk.

Az utóbbi eljárásnak számos előnye van. Legszembetünőbb előnye, hogy az enzimek nem károsodnak kémiailag. Továbbá, a monomerek megfelelő megválasztásával hidrofil környezet biztositható az enzimek számára, ami növeli a legtöbb enzim stabilitását. További előny az enzimrögzitési eljárás egyszerüsége és általánosan alkalmazható jellege.

A monomerek polimerizációját un. redox-iniciátorokkal szokás végezni [4] . Ezek viszonylag mély hőmérsékleten szabad gyökökre bomló iniciátor-rendszerek; többnyire erőteljes oxidálószerből, pl. perszulfátból és szerves aminból állnak. Bomlásuk azonban nehezen szabályozható; helyi tulmelegedés hatására az iniciátor rövid idő alatt teljesen elbomlik, ami rossz mechanikai tulajdonságokat eredményez; más esetben elbomlatlan iniciátor maradhat az enzimtartalmu gélben, nemkivánatos utóhatást és enzimkárosodást okozva. A redoxrendszerek bomlássebessége erősen függ a közegtől, igy nincs lehetőség arra, hogy a beépitendő enzim számára optimális körülményeket biztositsunk.

SUGÁRZÁSOS POLIMERIZÁCIÓ

Amint rámutattunk [5,6] , a monomerek polimerizációja enzimek jelenlétében előnyösen végezhető el nagyenergiáju sugárzással. Ez a megállapitás az első percre talán meglepő. Ismeretes ugyanis, hogy a sugárzás kárositja az érzékeny anyagokat, és hogy ebből a szempontból a vizes oldatok különösen veszélyesek. Megfelelő reakciókörülmények között azonban a polimerizáció már olyan kis sugárdózissal elvégezhető, amely az enzimeket nem kárositja. Ezen felül, az oldatban jelenlévő monomer verseng a szabad gyökökért az enzimek reakcióképes helyeivel, és ezáltal kémiai sugárvédő hatást fejt ki.



1. ábra

Kisüzemi méretü sugárzásos polimerizáció hőmérsékleti lefutása. A kobaltforrás aktivitása 800 Ci, dózisintenzitása 5 krad/h. Kiindulási hőmérséklet: 19 C^{o}.

A sugárzásos polimerizáció sajátos előnye, hogy rendkivül jól szabályozható. Az 1. ábrán pl. a következő összetételü kisüzemi polimerizáció hőmérsékleti lefutását mutatjuk be:

720 g akrilamid alapu monomerkeverék,

180 g bisz-akrilamid mint térhálósitó monomer,

9000 ml trisz puffer.

A besugárzás kobaltforrásban történt, 5 krad/h átlagos dózisintenzitással. A számitott várható maximális hőmérsékletemelkedés 23,6 C^{o}, a mért hőmérsékletemelkedés 23,4 C^{o} volt, vagyis a reakció lényegében adiabatikus körülmények között játszódott le. A polimerizáció mintegy 50 perc késleltetéssel indult, és mintegy 3 óra alatt lényegében lezajlott, ezután a rendszer /a sugárzás

folytatása esetén is/ a hőmérsékletkülönbséggel arányos sebességgel hült.

Amint látható, sugárzással rendkivül egyenletes reakciólefutás érhető el. Ennél is fontosabb, hogy a sugárzás pillanatszerüen megszakitható. Amint a hőtermelés leállásából vagy egyéb módon megállapitható, hogy a monomer elfogyott, a szabad gyökök termelése azonnal megszüntethető. Kémiai iniciátorokkal ilyen pontos adagolás természetesen nem valósitható meg.

Ismeretes, hogy mind a polimerizációban, mind pedig az enzimek károsodásában azonos tipusu szabad gyökök /elsősorban az OH-gyökök/ aktivak [5] . Ebből is nyilvánvaló, milyen fontos a szabad gyök előállitási időtartamának szigoru korlátozása.

Az enzimek megkötésénél két, egymással ellentétes követelménynek kell eleget tennünk. Egyrészt célszerü mennél nagyobb fajlagos aktivitásu géleket előállitani, ehhez a kiindulási oldatban nagy enzimkoncentrációra van szükség. Mennél nagyobb azonban a kiindulási enzimkoncentráció, annál kisebb az enzimmegkötési százalék. Az optimumot az enzim ára és a felhasználási technológia figyelembevételével kell megállapitani.

HOZZÁFÉRHETŐSÉG ÉS DIFFÚZIÓ

Az oldott enzimekről a kötött enzimekre való áttérés felveti a szubsztrátum és a termék transzportjának problémáját. Kisebb méretü szubsztrátumon viszonylag jobb hatásfokkal müködik a kötött enzim /a hatásfokbeli különbség egyes esetekben többszörös is lehet/. Egyes enzimmolekulák ugyanis olyan helyzetben vannak rögzitve, amelyben a nagyobb molekuláju szubsztrátumok nem képesek az aktiv helyhez férni, igy ezek a molekulák nem vesznek részt a reakcióban.

A kötött enzimek müködését gyakran hasonlitják az ioncseréhez, és valóban, mind a technikát, mind az alapanyagokat tekintve, sok a hasonlóság. Maga a reakció azonban lényegileg eltérő jellegü, és inkább a heterogén katalizishez hasonló. Az ioncserélő gyantákban egy aktiv helyen egyetlen kötődés megy végbe, itt viszont egy aktiv helyen igen sok reakció lejátszódhat. Az ioncserélő gyantákban végbemenő ionmegkötődés, mint ismeretes, ugy szólván minden esetben diffuziókontrollált, mivel a gyantaszemcsében lejátszódó diffuziós folyamat időszükséglete sokkal nagyobb a rendkivül gyors ionos reakciólépés időszükségleténél. A kötött enzimes reakció esetében más a helyzet. A szubsztrátum diffuziójának átlagos időszükséglete a gyöngyalaku gélszemcse belsejébe

$$\tau = 0{,}030 \frac{r^2}{D}$$

ahol r a részecske sugara cm-ben és D a diffuziós állandó cm^2/s-ben. Ha $r = 10^{-2}$ cm és $D = 10^{-7}$ cm^2/s, akkor $\tau \sim 30$ s. Ezzel szemben a szokásos /ipari/ enzimes reakciók időszükséglete pl. 1000 s vagy ennél is több. Igy a diffuzió többnyire nem befolyásolja lényegesen a reakciósebességet.

Akril-amid gélbe zárt fehérjebontó enzimmel végzett kisérleteink szerint mintegy 1 mm duzzadt gélszemcse-átmérő alatt sem a szemcseméret, sem a keveredés, ill. áramlás sebességének változtatása nem okozott lényeges eltérést a reakciósebességben. Gyorsabb müködésü és nagyobb koncentrációju enzimekkel tapasztalható a reakciósebesség módositása a diffuziós viszonyok miatt[7,8], mindenekelőtt azáltal, hogy csupán szemcsék felületén elhelyezkedő enzimmolekulák jutnak reakcióhoz.

A KÖTÖTT ENZIMEK TARTÓS FELHASZNÁLÁSA

Ismeretes, hogy a katalizátorok változatlansága az általuk katalizált folyamatokban relativ fogalom: még a nagy stabilitásu szervetlen katalizátorok is idővel szennyeződnek, mérgeződnek, kopnak, vagyis regenerálásra, illetve pótlásra szorulnak. Fehérjejellegük folytán fokozottan érvényes ez az enzimekre. Az enzimes reakciók komplex voltának, a biológiai anyagok érzékenységének figyelembevételével meglepő, hogy egyes megkötött enzimek milyen tartósan képesek aktivitásukat kifejteni.

Az enzimek tartós aktivitásának fogalma tulajdonképpen az enzimek megkötésével kapott értelmet. Az oldható készitményeket ugyanis nem lehet azonos körülmények között mindig uj szubsztrátummal ellátni, a hőállósági, tárolási vizsgálatokat pedig szubsztrátum nélkül végzik, tehát nem müködés közben végzett vizsgálatok.

Az enzimek tartós aktivitására mindenekelőtt három tényezőnek van befolyása:

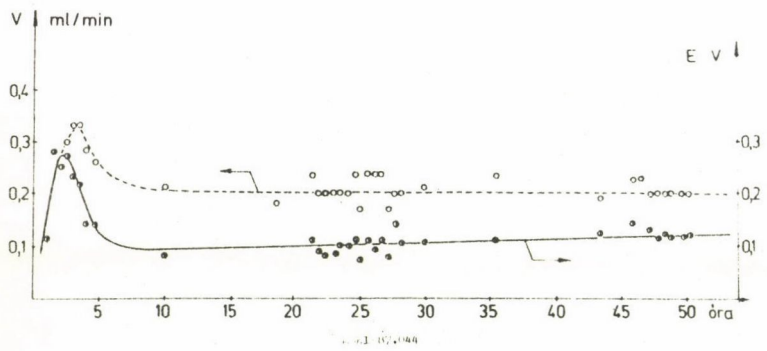
1. a vázanyag ellenállóképessége a tartós használatban, mechanikai igénybevétellel, mikrobiális fertőzéssel szemben;

2. az enzim inherens stabilitása;

3. az enzim stabilitása az adott vázban: a kötődés erőssége, a váz anyagának stabilizáló vagy denaturáló hatása.

Több szerző véleménye szerint a polimer gélbe zárt enzimek stabilitás vonatkozásában felülmulják a kovalens kötésü enzimeket. A sugárzással polimerizált matrixba zárt enzimek kedvező tulajdonságainak okaira már rámutattunk.

A 2. ábrán egy 30 ml térfogatu enzimkolonnában 17 g duzzasztott proteázgél müködését mutatjuk be, 50 órás folyamatos üzemben. Az ordinátán baloldalt az átfolyási sebesség, jobboldalt a kolonnatöltet kazeinbontó képességére jellemző extinkciós érték és az átfolyási sebesség szorzata /tehát a kolonnateljesitmény/ van feltüntetve. Amint látható, a kolonna teljesitménye és ezzel a reakció sebessége a vizsgálati idő alatt nem csökken, sőt valamelyest nő is[9,10]. Egy különösen nagy stabilitásu enzimfajta, az amiloglükozidáz megkötése esetén még 30 napos folyamatos müködés után sem lehetett aktivitáscsökkenést tapasztalni.



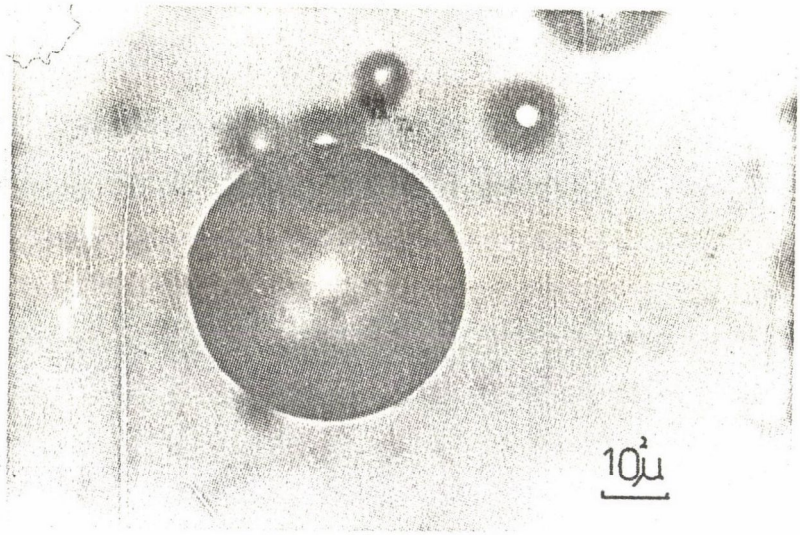
2. ábra

Folyamatos kazeinbontás 30 ml térfogatu laboratóriumi proteázoszlopban. V = átfolyási sebesség, ml/min; E.V = kolonnateljesitmény /E a szakaszosan vett minták extinkcióértéke./

A nagyenergiáju sugárzás kiválóan alkalmas arra is, hogy az enzimek megkötésére szolgáló polimert szabályos gyöngyalakban állitsuk elő. Ebből a célból az enzimet és a polimerizálandó monomerkeveréket szerves oldószerben szuszpendáljuk, és keverés közben besugározzuk. A kisérleti körülményektől függően 0,01 - 1 mm átmérőjü, szabályos gyöngyalaku enzimgélek állithatók elő /3. ábra/.[11,12]

ALKALMAZÁSI TERÜLETEK

Az oldhatatlan polimervázhoz kötött enzimek leggyorsabban természetesen a laboratóriumi gyakorlatban terjedtek el, kis mennyiségben rendelkezésre álló, értékes enzimfajták tartós használatát tették ilymódon lehetővé. A laboratóriumokban a kötött enzimeket általában kis, temperálható oszlopokban alkalmazzák.



3. ábra

Sugárzásos polimerizációval előállitott gyöngyalaku enzimgél mikroszkópos felvétele

Kézenfekvő az analitikai alkalmazás is.[13] Lehetővé válik egyebek között glükoz gyors meghatározása oldhatatlan glükoz oxidáz oszlopban. Még elegánsabb megoldás az "enzimelektród". Karbamid gyors meghatározása pl. közvetlenül történhet egy NH_4^+ - érzékeny üvegelektróddal olymódon, hogy az elektródot vékony rétegben ureáz tartalmu poliakrilamid géllel vonjuk be. A biológiai anyagok analizisében előforduló bonyolultabb feladatokat is igyekeznek kötött enzimekkel megközeliteni.

Ma már ismeretesek a kötött enzimek első ipari alkalmazásai. Japánban pl. az l-methionin előállitását ugy oldják meg, hogy az acilezett racém keveréket aminoaciláz enzimoszlopon folyatják át, amely csak az l-módosulatot deacilezi. A keményitő folyamatos elcukrositása is megoldható, részleges hidrolizis után, oldhatatlan amilo-glükozidáz enzimmel. A további lehetőségek között emlitésre méltó a 6-amino-penicillánsav előállitása és szteroid-átalakulások elvégzése folyamatos üzemben.

Az enzimekhez hasonlóan egyéb biológiai aktiv anyagok is oldhatatlan vázhoz köthetők. Az elválasztási technikában ezek az anyagok uj eljárást tettek lehetővé: az un. "affinitásos kromatográfiát". Az eljárás azon alapul, hogy a biológiailag aktiv anyagok egymáshoz kapcsolódása rendkivül specifikus. Ezáltal egyetlen lépésben elvégezhetők olyan elválasztási vagy tisztitási müveletek, amelyek a klasszikus módszerekkel száz lépésben sem adtak azonos értékü terméket.

Elvégezhető ilymódon enzimek elválasztása és tisztitása megkötött szubsztrátumokon vagy inhibitorokon, továbbá antitestek izolálása megkötött antigéneken; az igy előállitott antitestkészitmények nincsenek szennyezve sem a vérszérum egyéb alkatelemeivel, sem pedig antitestekkel. Inzulin-antitestek megkötése utján sikerült hatékony eljárást kidolgozni az inzulin elválasztására és tisztitására. A /14/ összefoglaló mintegy 50 enzimelválasztási és tisztitási eljárást ismertet, amely az affinitásos kromatográfián alapul.

A SUGÁRZÁSOS INICIÁLÁS SAJÁTSÁGAINAK ÖSSZEFOGLALÁSA

A ^{60}Co γ-sugárzását több tulajdonsága kiválóan alkalmassá teszi az enzimek és egyéb érzékeny, biológiailag hatékony anyagok jelenlétében végbemenő polimerizációs reakciók iniciálására:

1. az iniciálásnak nincs aktiválási energiája. Ennek következtében a reakció bruttó aktiválási energiája csekély, vagyis már szobahőfokon is jelentős sebességgel játszódik le;

2. a kis aktiválási energia miatt a reakció termikusan stabilis; helyi tulmelegedésről, megszaladástól még nagy reakciótérfogatban sem kell tartani;

3. a gyökképződés sebessége független a pH-tól és a reakció folyamán bekövetkező pH-változásoktól, valamint esetleges adalékanyagoktól;

4. az iniciálás jól kézbentartható, szabályozható, a gyökképződés bármikor pillanatszerüen megszakitható;

5. a rendszerben nem marad elbomlatlan iniciátor, amely a tárolás vagy felhasználás során károsodást okozhatna;

6. a sugárzás nagy áthatolóképessége folytán 10 literes vagy nagyobb edények is viszonylag egyenletesen átsugározhatók, mégpedig függetlenül a rendszer átlátszatlanságától, tejesedésétől. Ez a körülmény főleg az ibolyántuli sugárzással végzett iniciálással szemben jelent előnyt.

Érzékeny, bomlékony rendszerekben végzett reakciók elvégzésénél egyes szakemberek huzódoznak a nagy energiáju sugárzás alkalmazásától. Tapasztalataink azt bizonyitják, hogy bizonyos esetekben éppen az érzékeny rendszerek kezelésében biztosit sajátos előnyöket a nagy energiáju sugárzás.

Valamennyi kisérletünket biokémikusok aktiv segitségével végeztük. Elsősorban dr. Udvardy-Nagy Istvánnét és Zalán Györgyöt /Kőbányai Gyógyszerárugyár/, valamint dr.László Elemér adjunktust és Bánki Bulcsu tanársegédet /Budapesti Müszaki Egyetem Mezőgazdasági Kémiai Technológiai Tanszék/ illeti köszönet. Megköszönöm munkatársaim, dr. Czvikovszky Tibor és Takács Erzsébet vegyészmérnök, továbbá Schill Lászlóné és Jaksa Pálné lelkes közremüködését.

IRODALOM

1. *Tolnay P.*,Ipari enzimológia, Müszaki Könyvkiadó, Budapest 1963
2. *Nyeste L.*, M.Kém.L., 25/1970/280 és 362
3. *Silman,I.H., Katchalski,E.*,A.Rev.Biochem. 35/1966/873
4. *Bernfeld,P.,Wan,J.*,Science 142/1963/678
5. *Dobó J.*, Acta Chim./Budapest/ 63/1970/453
6. BRD Offenlegungsschrift 1955638 /Müanyagipari Kutató Intézet, 1968.nov.6/
7. *Selegny, E., Broun,G., Geoffroy,J., Thomas,D.*, J.Chim.Phys.66/1969/391
8. *Hornby,W.E., Lilly,M.D., Crook.E.M.*, Biochem.J. 107/1968/669
9. *Zalán Gy., Czvikovszky T.*, 12. Biokémiai Vándorgyülés, Pécs 1971, 2.k. 357
10. *Czvikovszky T., Zalán Gy.*,lásd /9/ 2.k.365
11. *Takács E., Zalán Gy., Czvikovszky T., Dobó J.*, 13. Biokémiai Vándorgyülés, Szombathely 1972, 2.k.11.előadás
12. *Zalán Gy., Takács E., Szűcs E.*,lásd /11/ 2.k. 10.előadás
13. *Guilbault, G.G., Montalvo,J.G.*, J.Amer.Chem.Soc. 92/1970/2533
14. *Orth,H.D., Brümmer,W.*, Angew.Chem. Intern.Ed. 11/1972/249

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 1973. 4. szám.

HARÁNTLYUKU KRISTÁLY ALKALMAZÁSA ÁRAMLÓ FOLYADÉK RADIOAKTIVITÁSÁNAK MÉRÉSÉRE GÉLSZŰRŐ TECHNIKÁBAN

Ditrói F., Péter F., Lampé L. Lakatos L.
Debreceni Orvostudományi Egyetem Szülészeti és Nőgyógyászati Klinikája és Gyermekklinikája

A frakciószedésnél lényegesen gyorsabb berendezés és a vele szerzett tapasztalatok ismertetése

Применение кристалла с поперечным отсеком в гель-фильтрации для измерения радиоактивности протекающей воды
Дитрои, Ф., Петер, Ф., Лампе, Л., Лакатош, Л.

Установка, способная на измерение радиоактивности протекающей жидности более экономично по времени, чем метод сбора фракций

The Application of Transverse Well Type Scintillator for Measuring of the Radioactivity or Flowing Liquids in Gel Filtration Technique
Ditrói, F., Péter, F., Lampé, L., Lakatos, L.

An apparatus, substantially faster than the fraction collecting method and experience with it.

Az utóbbi évek pajzsmirigyhormon-kutatásának egyik jelentős felismerése szerint az anyagcsere-állapot szempontjából nem a fehérjéhez kötött, hanem a szabad formában keringő hormon mennyisége a döntő. Normál szérumfehérje-viszonyok mellett a pajzsmirigyhormon-kötő képesség /TBC- thyroid binding capacity/ vizsgálata hasznos felvilágositást adhat a pajzsmirigy állapotáról. Hiperthyreosis esetén nagy mennyiségü pajzsmirigyhormon képződik, igy a szérumfehérjék kötési helyei viszonylag telitettek, tehát a kivülről bevitt, jelzett pajzsmirigyhormonból csak keveset képesek megkötni, és viszonylag sok hormon marad szabadon. Hypothyreosisban ennek a forditottja tapasztalható. Ezen elv ismeretében számos szerző dolgozott ki in vitro diagnosztikus módszert a pajzsmirigy müködési állapotának vizsgálatára.

Jelentős kisérletes és klinikai adat, hogy az ösztrogének fokozzák a szérumfehérjék pajzsmirigyhormon-kötő kapacitását[4] Igy a terhesség alatt és ujszülött korban különösen nehéz a szabad pajzsmirigyhormonok mennyiségi viszonyainak tanulmányozása[1,11,12,16].

A különféle metódikák elvileg leginkább abban térnek el egymástól, hogy az egyes szerzők milyen módszert alkalmaztak a szérum szabad pajzsmirigyhormon-tartalmának megkötésére. *Hamolsky*[7] igen elterjedt módszerében a vörösvérsejtek kötési képességét használta fel a szabad, jelzett pajzsmirigyhormonok megkötésére. Más szerzők ioncserélő gyantát[15,21], vagy Sephadex-gélt[8] alkalmaztak ugyanilyen célból.

Az utóbbi időben széles körben elterjedt gélszürő technikát a pajzsmirigyhormon-kutatásban is eredményesen alkalmazták. *Lee* és munkatársai[13], *Hocman*[9], *Lissitzky* és munkatársai[14] stb. a szabad tiroxin, *Shapiro* és *Rabinowitz*[20], *Rabinowitz* és munkatársai[18], valamint *Scriba* és munkatársai[19] a trijódtironin arányának meghatározására alkalmazták sikerrel e módszert. Hazai szerzők közül - saját munkáink mellett[2,3,10,17] - *Gyertyánfy*, *Földes* és munkatársai[5,6] dolgozataira hivatkozunk, amelyekben a szabad pajzsmirigyhormonok gélfiltrációs módszerrel történő meghatározásával szerzett tapasztalataikat ismertették.

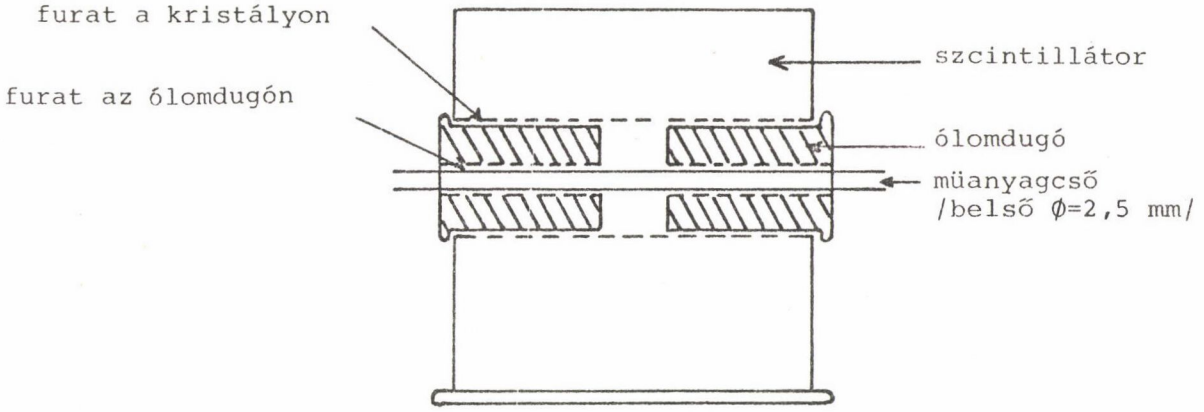
A szabad pajzsmirigyhormonok izotóptechnikával és Sephadex-szel végzett meghatározásánál szerzett első metodikai tapasztalatainkról már beszámoltunk[2,3]. Felvetettük azt a lehetőséget, hogy a frakciószedés, majd a frakciók egyenkénti mérésének idő- és munkaerőigényes módszere helyett célszerü lenne olyan áramlófolyadék-számláló berendezést alkalmazni, amelynek térfogata csak néhány tized milliliter. Ezt ratemeterrel és regisztráló berendezéssel összekapcsolva, a mérést csaknem teljesen automatikussá és jelentősen gyorsabbá tehetnénk.

Feladatunk megoldásában a Gamma Müvek segitett.* Kisérleti célra rendelkezésünkre bocsátott egy harántlyuku γ-kristályt, amelyet az 1. ábrán feltüntetett elrendezésben használtunk.

Mint látható, a kristályüreget két végén ólomdugóval zártuk le ugy, hogy belül a dugók vége között 10 mm-es távolság maradjon. A dugókon átmenő egyenes furaton 2,5 mm belső átmérőjü müanyag csövet vezettünk keresztül. A cső egyik végét a Sephadex-oszlophoz, másik végét térfogatbeosztásos szedőedénybe csatlakoztattuk. Az egész berendezés vázlatos rajzát a 2. ábra szemlélteti.

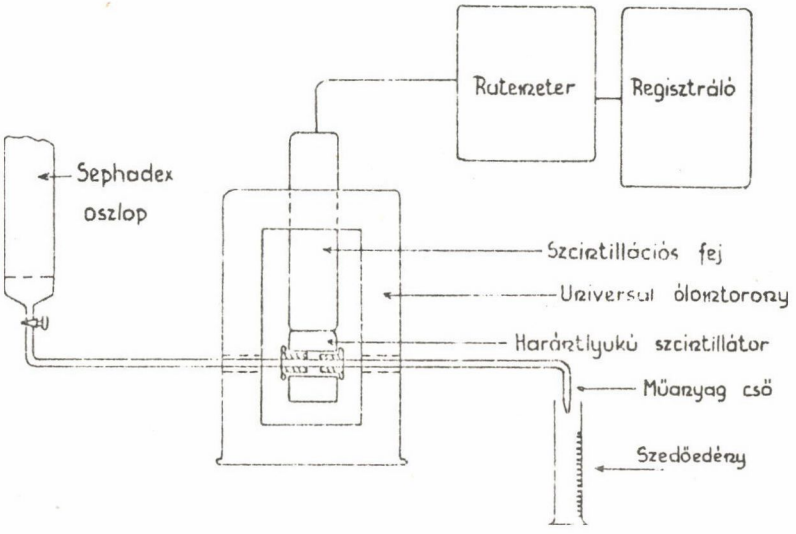
---

*Ezuton is köszönetet mondunk dr.Maschek Tivadar osztályvezetőnek, szives támogatásáért.



1. ábra

A harántlyuku szcintillátor keresztmetszete

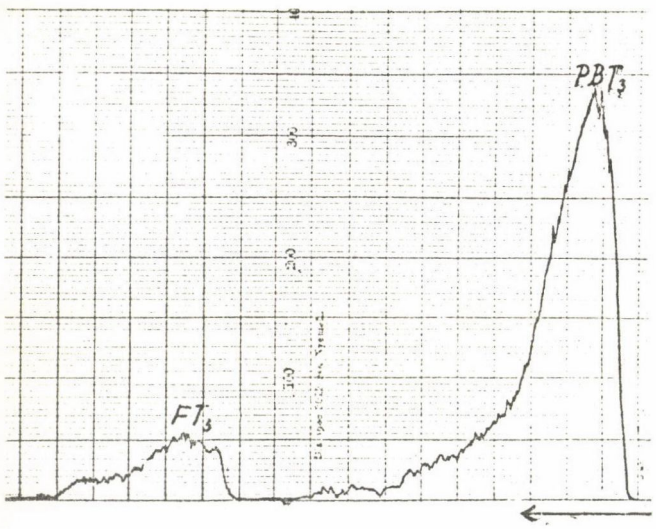


2. ábra

A teljes készülék vázlatos rajza. NC 116-os ratemetert és EPP szovjet kompenzográfot alkalmaztunk

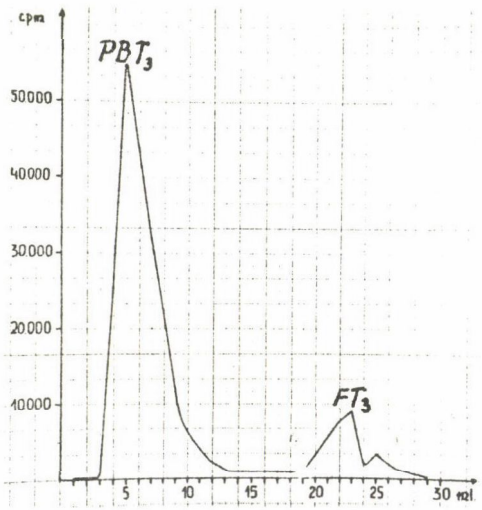
Ha a méretadatok alapján kiszámitjuk a müanyag cső árnyékolatlan részének térfogatát, akkor közel 0,05 ml-t kapunk. Ez a milliliterenkénti frakciószedés és mérés módszerével szemben 1/20 rész térfogatot jelent, tehát az elució folyamán bekövetkező aktivitásváltozást érzékenyen tudjuk követni. Harántlyuku szcintillátor alkalmazásával az áramló folyadék radioaktivitása viszonylag egyszerüen mérhető. Minden olyan esetben, ahol az elució folyamán az áthaladó folyadék radioaktivitását kell mérni, a módszer jól alkalmazható. Az árnyékolatlan, tehát a mért térfogat - az átmenő cső átmérőjétől és az árnyékoló dugó nagyságától függően - széles határok között változtatható, igy a mérés pontossága a kivánalmaknak megfelelően szabályozható.

A harántlyuku szcintillátor ilyen összeállitásban való alkalmazásának az a további előnye, hogy a frakciószedés, majd a frakciók egyenkénti mérésének időigényes munkáját kiküszöljük. A 2. ábra szerinti berendezést alkalmazva, lényegesen lerövidül a vizsgálat ideje. Csupán a kisérleti anyag előkészitését, oszlopra vitelét, az eluens feltöltését, végül a müszer által rajzolt görbe planimetrálását, értékelését kell elvégezni. 15 perces inkubációs idő és 1-2 ml/min áthaladási sebesség esetén /szemcsemérettől függően/, harántlyuku kristállyal mérve, egy minta kiértékelésre váró diagramja 30-45 perc alatt készül el. A frakciószedés módszerével ehhez az időtartamhoz még hozzáadódik a frakciók radioaktivitásának megmérése, ami szérummintánként minimálisan 90 perc. A 3. és 4. ábrán egy-egy görbét mutatunk be, amelyeket azonos mintából az előbbiekben ismertetett berendezéssel, illetve frakciószedéssel kaptunk.



3. ábra

Köldökzsinórvér-minta kötött/szabad trijódtironin frakcióinak viselkedése harántlyuku kristály alkalmazánál



4. ábra

Köldökzsinórvér-minta kötött/szabad trijódtironin n frakcióinak viselkedése frakciószedési technikánál

20 mintát vizsgáltunk mindkét módszerrel. Párhuzamos meghatározásaink /köldökvér/ szerint a harántlyuku kristállyal végzett mérés, regisztrálás és planimetriás kiértékelés eredménye átlagosan 16,8 % ± 1,11, mig a frakciókat üreges kristállyal mérve 16,5 % ± 0,70. A kötött és a szabad trijódtironin és tiroxin arányának vizsgálatát az elmult években kereken 300 alkalommal végeztük el, és jó klinikai tapasztalatokat szereztünk[3,17]. A hypothyreosisban és hyperthyreosisban kapott kis, illetve nagy szabdhormon-arányon felül megállapitottuk, hogy terhesség alatt a normálisnál kevesebb a szabad hormonok

aránya, ujszülöttkorban pedig a fokozatos normalizálódás a jellemző. Kövér gyermekek egy csoportjában szignifikánsan kis szabad trijódtironin-arányt tudtunk kimutatni[10]. A módszer klinikai értéke, továbbá a technikai módositás előnyei indokolják ezen metodikai ujitás széleskörü ismertetését.

IRODALOM

1. *Barkai L., Péter F.*, M. Nőorv. L. 31 /1968/ 467
2. *Ditrói F., Lampé L., Radó É., Péter F., Lakatos L.*, "Nukleáris medicinában alkalmazott módszerek és eszközök" II. kötet, 55/1-6. Budapest 1968.
3. *Ditrói F., Péter, F.*, Izotóptechnika 14 /1971/ 36
4. *Dowling, J.T., Freinkel, N., Ingbar, S.H.*, J.clin.Invest. 35 /1956/ 1263
5. *Gyergyánfy G., Földes J., Gesztesi E., Takács I.*, Kiséri. Orvostud. 20 /1968/ 252
6. *Gyertyánfy G., Földes, J.*, Z.klin.Chem. Klin.Biochem. 2 /1971/ 117
7. *Hamolsky, M.W., Stein, M., Freedberg, A.S.*, J.Clin.Endocr. 17 /1957/ 33
8. *Hansen, H.*, Scand, J.Clin.Lab.Invest. 18 /1966/ 240
9. *Hocman, G.*, J.Chromatogr. 21 /1966/ 413
10. *Lakatos L., Péter F., Harsányi M., Szabó B.*, M.Pediáter 2 /1968/ 257
11. *Lampé L., Dzvonyár J., Ditrói F.*, M. Nőorv.L. 29 /1966/ 92
12. *Lampé L., Dzvonyár J., Ditrói F., Kertész L.*, M. Nőorv. L. 29 /1966/ 162
13. *Lee, N.D., Henry, R.J., Golub, O.J.*, J.Clin.Endocr. 24 /1964/ 486
14. *Lissitzky, S., Bismuth, J., Rolland, M.*, Clin.chim.Acta 7 /1962/ 183
15. *Mitchell, M.L., Harden, A.B., O'Rourke, M.E.*, J.Clin.Endocr. 20 /1960/ 1474
16. *Péter F., Lampé L., Asztalos M.*, Orv. Hetil. 105 /1964/ 1128
    Mschr.Kinderheilk. 112 /1964/ 62
17. *Péter, F., Ditrói, F., Kertész, L., Harsányi, M., Lampé, L.*, II.Konf. Ungarischen Gesellsch. Labor-Diagnostik Budapest 1966, 10.
18. *Rabinowitz, J.L., Shapiro, B., Johnson, P.*, J.Nucl.Med. 4 /1963/ 139
19. *Scriba, P.C., Landgraf, R., Heinze, H.G., Schwarz, K.*, Klin.Wschr. 44 /1966/ 69
20. *Shapiro, B., Rabinowitz, J.L.*, J.Nucl.Med. 3 /1962/ 417
21. *Sterling, K., Tabachnick, M.*, J.Clin.Endocr. 21 /1961/ 456

HIREK

IZOTÓPOK ÉS SUGÁRZÁSOK ORVOSI FELHASZNÁLÁSA

A nyugatnémet Willy Rüsch-cég ^{60}Co-besugárzó berendezéséhez további 150 000 Ci ^{60}Co-forrást rendelt az Atomic Energy of Canada, Ltd-től. Ezzel a sterilezésre használt berendezés összaktivitása 300 000 Ci-re nő. A berendezést mintegy 45-55 %-ban külső cégek is használják.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, április

SUGÁRZÁSOK A KUTATÁSBAN

A francia Atomenergia-bizottság Saclay-i Magkutató Intézetében két ^{60}Co-töltetü besugárzó berendezés és két részecskegyorsitó müködik. A 20 000 Ci-aktivitásu Pagune besugárzó 10, egyenként 2000 Ci-s kobaltrudból áll, amelyek különféle geometriába rendezhetők. A másik sugárforrás az 1 millió Ci aktivitásu Poseidon. A Vulcain 3 MeV/1 mA Van de Graaff generátor elektronnyalábjának szélessége az ablaknál 40 cm; az ipari kutatásra használható Promethée gyorsitó teljesitménye 30 mW.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, április

A Gulf Energy and Enviromental Systems Co. /California/ TRIGA kutatóreaktort szállit a román Nukleáris Technikai Intézetnek. A reaktor 1976-ra készül el, s a szakemberek kiképzési költségével együtt 4 millió dollárba kerül.
Kerntechnik, március

IZOTÓPOK ÉS SUGÁRZÁSOK A MEZŐGAZDASÁGBAN

Az ENSz-FAO-IAEA segélyprogramjának keretében az NSzK γ-sterilező berendezést adott át a perui atomenergia-bizottságnak, a földközitengeri gyümölcslégy sterilhimes korlátozására. Hetente 200 millió mesterségesen keltetett légy sterilezését irányozzák elő.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, április

SUGÁRZÁSOK AZ IPARBAN

A Nuclear Technology április száma cikket közöl textilfesték hulladékoldatok besugárzás és kémiai oxidálás kombinált alkalmazásával végzett szintelenitéséről.

Az Atomnaja Energija március számában részletesen beszámol a Budapesten 1972. okt.2-4 között rendezett és a nagy sugárforrások ipari bevezetésével foglalkozó KGST-konferenciáról, valamint a Moszkvában 1972. okt.23-25 között rendezett össz-szövetségi iskoláról, amelyen a radioizotópos technika szénipari felhasználásával foglalkoztak.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

309024

IV

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 5. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 5. SZÁM

BUDAPEST 1973. MÁJUS

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
– KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Vajta László, a MTA levelező tagja

Országos Kőolaj- és Gázipari Tröszt, 1363 Budapest, Szt. István krt.11.

Dallos Illés,

Kőolaj- és Földgázbányászati Ipari Kutató Laboratórium, 1055 Budapest, Marko u. 16.

Czeglédi István, Márhoffer József,

Országos Kőolaj- és Gázipari Tröszt Geofizikai Főosztály, 1363 Budapest, Szt. István krt. 11.

Vajta Lászlóné Králik Zsófia, a kémiai tudományok kandidátusa

Nagynyomásu Kisérleti Intézet Ásványolajminőség-ellenőrző Intézete, 1428 Budapest 8, Pf. 36

Bálint Tibor, a kémiai tudományok kandidátusa,

Magyar Ásványolaj- és Földgázkisérleti Intézet, 8200 Veszprém, Wartha V.u. 2.

Péczeli Béla,

Dunai Kőolajipari Vállalat, 2440 Százhalombatta

Kozma László; Bartha László, a kémiai tudományok kandidátusa

MTA Müszaki Fizikai Kutató Intézet, 1325 Budapest, Ujpest I. Pf.76

Horváth Magdolna,

Orvostovábbképző Intézet Onkoradiológiai Tanszék, 1122 Budapest Ráth Gy. u. 7/9

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7582
1973. 5. szám
Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850
Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára
Évi előfizetési dija: 240,-Ft Egyes szám ára: 20,-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

A Kőolaj- és Gázipari Izotópalkalmazási Munkabizottság 10 éve..... 233
Vajta L.

10 лет Рабочего комитета по использованию изотопов в нефте-газовой промышленности

Ten Years of the Working Committee on Isotope Application in Petroleum and Gas Industry

Radioizotópok alkalmazása a magyar szénhidrogén-termelésben..... 237
Dallos I.

Применение радиоизотопов в производстве углеводородов в Венгрии

Use of Radioisotopes in the Production of Hydrocarbons in Hungary

Nukleáris módszerek térhóditása a mélyfurási geofizikában..... 244
Czeglédi I., Márhoffer J.

Распространение ядерных методов в геофизическом глубоком бурении

Nuclear Techniques in Geophysical Deep Boring

Radioaktiv izotópok alkalmazása a kőolajfeldolgozásban..... 252
Vajta L., Bálint T., Péczeli B.

Применение радиоактивных изотопов в обработки нефта

Application of Radioactive Isotopes in Petroleum Refinery

Az autoradiográfia hibaforrásai I. 265
Kozma L., Bartha L.

Источники ошибок в авторадиографии I.

Error Sources in Autoradiography, I.

Sugárvédő hatásu AET fehérjékhez való kötődésének kvantitativ viszonyai..... 270
Horváth M.

Количественные отношения связи соединения радиопротектора АЭТ с белками

Quantitative Analysis of the Bond of Radioprotective AET with Proteins

Sugárvédő AET fehérjék közti kevert diszulfid kötés tiolos hasitásának reakciómechanizmusa..... 275
Horváth M.

Механизм реакции расщепления смешенной дисульфидной связи, образованной между соединением - радиопротекторам АЭТ и белками.

Reaction Mechanism of Thiol Splitting of Mixed Disulfide Bond Formed Between Radioprotective AET and Proteins

Besugárzás hatása fehérje és sugárvédő AET közötti kevert diszulfid kötésre..... 279
Horváth M.

Изучение влияния облучения на смешенную дисульфидную связь соединения-радиопротектора АЭТ и белков

Effect of Irradiation on the Mixed Disulfide Bond Between Proteins and Radioprotective AET

HIREK..... 284

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 233-236

A KŐOLAJ- ÉS GÁZIPARI IZOTÓPALKALMAZÁSI MUNKABIZOTTSÁG 10 ÉVE

Vajta L.
Országos Kőolaj- és Gázipari Tröszt, Budapest

10 лет Рабочего комитета по использованию изотопов в нефте-газовой промышленности
Вайта, Л.

Ten Years of the Working Committee on Isotope Application in Petroleum and Gas Industry
L. Vajta

Több mint 10 éve, 1962-ben alakult az Országos Atomenergia Bizottság Izotópalkalmazási Szakbizottsága keretén belül a Kőolaj- és Gázipari Izotópalkalmazási Munkabizottság.

Az izotópalkalmazási kísérletek megindulásával már az 50-es évek során értünk el eredményeket a népgazdaság különféle területein, igy a kőolaj- és gáziparban is, de a munka koordinálatlanul folyt, és az eredmények elterjedését számos nehézség akadályozta.

Munkabizottságunk azzal a feladattal alakult, hogy tudatos kísérletező munka induljon meg mindazon területeken, ahol izotópok alkalmazása a kőolaj- és gázipar szempontjából eredményes lehet.

A KŐOLAJ- ÉS GÁZIPAR FEJLŐDÉSE AZ ELMULT 10 ÉV SORÁN

Az izotópalkalmazási területek kiválasztásánál figyelembe kellett vennünk, hogy iparágunkra a *gyors növekedés* a jellemző. Épp az elmult évtized alatt vált a magyar kőolaj- és gázipar Középeurópa egyik jelentős gazdasági, müszaki szervezetévé. Bár a magyar kőolajtermelés ez alatt az idő alatt csak kismértékben növekedett /évi 1,7 millió tonnáról 2 millióra tonnára/, e számok mögött hatalmas munka rejtőzik, hiszen e termelési szint eléréséhez az algyői

kőolajmező megkutatására és termelésbe állitására volt szükség. Rendkivül szembetünő a földgáztermelés fejlődése: e 10 év alatt az alig évi több mint 100 millió m^3-ről 1972-re közel 4 milliárd m^3-re nőtt. 1962-ben a legnagyobb kőolajfinomitó a 2 millió tonna évi kapacitásu Komáromi Kőolajipari Vállalat volt, a Dunai Kőolajipari Vállalat /DKV/ épitése pedig éppen csak hogy megkezdődött. 1972-ben a DKV már 7-8 millió tonnás kapacitással zárta az évet. A magyar kőolajfeldolgozás e 10 év alatt több mint kétszeresére nőtt, 3,1 millió tonnáról 7,2 millió tonnára.

Az évtized elején az országban található kőolaj- és gázvezeték hossza pár száz km-t tett ki, jelenleg a vezeték hossza mintegy 2500 km.

TEVÉKENYSÉGÜNK FŐ IRÁNYAI

Az izotópalkalmazás a kőolaj- és gázipar eltérő jellegü területein más és más feladatok megoldásában nyujtott segitséget. Az egyes fő területek eredményei a következőkben foglalhatók össze.

A geofizika területén már az 50-es évek közepétől foglalkoztak a radioaktiv karotázsmérésekkel. A kezdeti sikerek után ez a tevékenység, különféle nehézségek miatt, mélypontra zuhant, majd a bizottság megalakulása után, az OAB támogatásával, fokozatos fejlődésnek indult. 1965-ben már 100 000 méternyi, 1972-ben 275 000 méternyi radioaktiv karotázsmérést végeztek.

E módszer alkalmazásának jelentősége főleg a bonyolultabb, mélyebb rétegek vizsgálatánál igen nagy. Az import müszerek alkalmazása mellett jelentősen fejlődött a hazai müszergyártás müszaki szinvonala is, főleg a nagy hőmérsékletet türő berendezések kifejlesztésében. Ez utóbbi a hazai rendkivüli geotermikus viszonyok mellett igen nagy jelentőségü munka volt.

A kőolaj- és gáztermelés területén az 50-es évek második felében megindult munka a bizottság segitségével meggyorsult. A béléscső cementezésének ellenőrzése, a béléscső tömörségének, a rétegrepesztés helyének vizsgálata, nyitott rétegekben végbemenő folyadékkommunikáció ellenőrzése jelentették a fő alkalmazási területeket.

Itt szeretném megemliteni, hogy 1967-től fokozott jelentőségre tett szert a radiográfiás defektoszkópia. E módszer jelentősége a gyorsuló vezetéképités alapfeltételévé vált.

A kőolajfeldolgozás mérési módszereinél alkalmazta az izotópokat /kéntartalom meghatározására szénhidrogénekben, radiogázkromatográfiára, petrolkémiai reakciók követésére, szintmérő módszerek kidolgozására/. E módszerek mellett fokozott jelentőségre tett szert, az aktivációs analitika. Ez utóbbi nyomelemek meghatározására, tribológiai vizsgálatokra, benzinek ólomtartalmának meghatározására szolgált.

Rendkivül eredményes volt az izotópoknak technológiai vizsgálatokra tör-

ténő felhasználása /cseppfelhordás meghatározása vákuumdesztillációs toronyban, kőolajtermékek keveredési törvényszerüségének megállapitása csővezetékekben, stb./.

A BIZOTTSÁG MUNKÁJÁNAK ÉRTÉKELÉSE

A Kőolaj- és Gázipari Izotópalkalmazási Munkabizottság 10 éves tevékenysége eredményesnek itélhető meg. A felsorolt alkalmazási területek növekvő jelentőségét az izotópfelhasználás növekedésével illusztrálhatjuk. Mig 1962-ben 43 izotóptétel felhasználására került sor 300 000 Ft értékben, 1967-ben a felhasznált izotópok értéke 600 000 Ft volt, 1972-ben pedig 87 tételre volt szükség, 1 500 000 Ft értékben.

A kőolaj- és gáziparban jelenleg közel 200 fő foglalkozik, tulnyomórészt fő hivatásban, izotópalkalmazási kutatásokkal, illetőleg izotópok gyakorlati felhasználásával.

Bizottságunk kerülte a bürokráciát, a gyakori huzamos üléseket és munkájában két célkitüzés vezette:

1. *az izotóp alkalmazása nem öncél*; izotópokat csak arra a célra szabad felhasználni, hogy müszaki-gazdasági előnyökhöz jussunk;

2. a már *bevált módszereket kell bevezetni*, és az ipar egész területén elterjeszteni.

A gazdasági eredmény minden területen becsülhető, s bár az ilyen becslések jósági foka néha fenntartásokkal fogadható, biztos, hogy a gazdasági eredmény az izotópalkalmazási költségeknek sokszorosa. Csak példaképpen említem a Százhalombatta-szajoli termékvezetéket, ahol a több termék egy vezetéken történő szállitása évi mintegy 10 millió Ft vasuti fuvarköltség megtakaritásával jár.

A JÖVŐ FELADATAI

A kőolaj- és gázipar gyors fejlődése az előttünk álló évtizedben is tovább folytatódik. Az évtized végére tovább nő a szénhidrogének jelentősége az energiastrukturában, kibontakozik a központi petrolkémiai fejlesztési célprogram, általánossá válik a gépesités. Az országban felhasznált gáz mennyisége és a kőolajtermékek forgalma az elkövetkezendő hét évben kétszeresére fog nőni. E gyors fejlődés parancsolóan igényli az izotópalkalmazás eredményeinek megszilárditását és az izotópok minél szélesebb körü alkalmazását. Főleg a radiográfiás módszer területén várható gyors fejlődés.

A széleskörü alkalmazás igényli a sugárbiztonsági szolgálat fejlődését, a növekvő káderigény pedig a szakoktatási módszerek fejlesztését.

A felsorolt eredmények mögött áldozatos és odaadó munka áll. Köszönetet mond bizottságunk mindazoknak, akik a bizottság keretén belül vagy kivül tevékenykedve a fejlődéshez hozzájárultak.

Köszönetet mondunk az olaj- és gáziparon kivüli szervezeteknek, különösen az OAB Izotópalkalmazási Szakbizottságának, hogy támogatásával és irányitásával munkánkat eredményesen végezhettük.*

---

*A következőkben a jubileumi ülésen elhangzott három előadást tesszük közzé. A szerkesztőség.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 237-243

RADIOIZOTÓPOK ALKALMAZÁSA A MAGYAR SZÉNHIDROGÉN-TERMELÉSBEN

Dallos I.
Kőolaj- és Földgázbányászati Ipari Kutató Laboratórium, Budapest

Történeti áttekintés a radioaktiv izotópok alkalmazásáról a geofizikai karotázsméréseknél, a kutvizsgálatoknál, a rétegrepesztés helyének meghatározásánál, az injektálási profil felvételénél, hegesztési varratok ellenőrzésénél.

Применение радиоизотопов в производстве углеводородов в Венгрии
Даллош, И.

Обзор развития применения радиоизотопов в геофизическом каротаже, в изучении скважин, в определении расположения раскола пласта в снятии профиля инъекции а также в проверке качества сварных швов.

Use of Radioisotopes in the Production of Hydrocarbons in Hungary
Dallos, I.

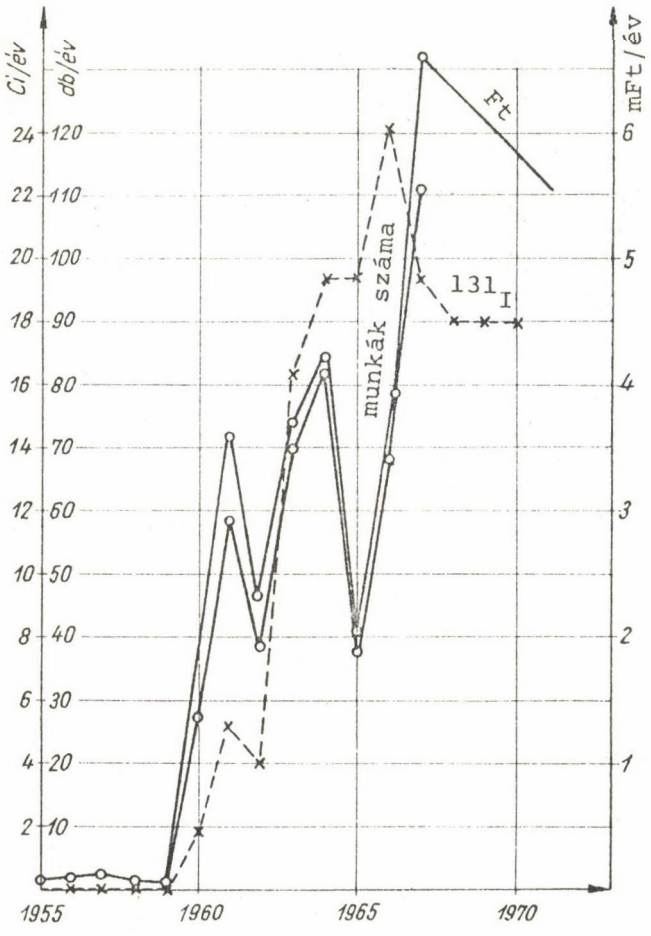
A historical survey of uses of radioisotopes in geophysical logging, in well control, in localizing layer split, in taking injection profile and in weld control.

A magyar szénhidrogén-termelés - sokféle és müszakilag kényes problémáinak megoldására, más államokhoz hasonlóan - aránylag korán volt kénytelen a radioizotópokhoz fordulni. Először nálunk is a geofizikai karottázsméréseknél alkalmazták őket. 1954-ben érkezett az első Po-Be neutronforrás a Szovjetunióból, és ezzel elkezdődtek a természetes γ-, neutron-γ- és γ-γ-radiokarottázsmérések, amelyek ma is a legnagyobb létszámu és jelentőségü, sugárzóanyagot alkalmazó részleget képviselik az olajiparban, az Alföldön négy helyen összesen 50, a Dunántulon 20 dolgozót foglalkoztatva.

Időrendben a második terület a radioizotópos kutvizsgálat volt. Az első technológiai módszer a béléscső mögötti cementpalást magasságának meghatározása volt, ^{131}I-dal. Ezen legegyszerübb alkalmazás terjedt el legnagyobb mértékben, főleg az alföldi kutaknál. Itt ugyanis a magasabb geotermikus gradiens miatt a hőfokmérés nehézkesebb, és a radioizotópok alkalmazása szabadabb munkaidőbeosztást tesz lehetővé a szelvényező csoportnál, mivel nem kell adott időpontban végezniök a mérést. A NaI vizes oldata formájában levő ^{131}I-ot

általában 10, de legalább 6 mCi mennyiségben adagoljuk egy átlagos mélységü kut cementfej-mennyiségének első részéhez. Kezdetben süritett levegővel adagoltuk az izotópot a cementező fejbe. Kerülővezetékes módszert is alkalmaztunk, de a legjobban az vált be, ha az izotópot tartalmazó fiolát a cementező agregátor vizes tartályában törtük fel. Ahol az esetleges kiülepedés folytán számitani lehet a jelzőanyagos viz elkülönülésére, finomra őrölt anioncserélő mügyantaport adunk a jódos fiolába.

A másik elterjedt és rendszeresen alkalmazott radioizotópos kutvizsgálati technológia a béléscsövezés zárási hiányosságainak vizsgálata ^{131}I-dal. Ezen módszernél a vizsgálandó szakasznak megfelelő mennyiségü, 0,2-0,5 mCi/m^3 fajlagos aktivitásu vizet nyomunk a termelőcsövön át a kutba. A kuttérből a jelzett folyadékot a perforáción vagy a béléscső sérülésén a cső mögé nyomva és forditott öblögetéssel a kutat a csőre tapadó aktivitástól megtisztitva, γ-szelvényt veszünk fel. A nagyobb impulzusszámu helyek jól mutatják a béléscső mögötti esetleges folyadékcirkulációt vagy a szomszédos perforációk közötti folyadékkommunikációt, illetve a béléscső sérülésének pontos helyét. E két izotópos módszert, főleg az alföldi kutaknál, évek óta rendszeresen alkalmazzák. Az 1. diagram az évenkénti munkálatok számát, a felhasznált ^{131}I-mennyiséget és az 1958-as forintban kifejezett gazdasági megtakaritást tünteti fel.



Dunántuli üzemekben többször határozták meg radioizotóppal kutakban a rétegrepesztés helyét. A réteg repedési helyének meghatározására kezdetben ^{59}Fe-sal jelzett repesztőhomokot használtunk, 1,8 mCi/kg fajlagos aktivitással, 3-4 mCi mennyiségben. A homokot ferriklorid oldatban való áztatással, hevitéssel és mosással jeleztük. Mosásnál azonban sok ^{59}Fe-oldat keletkezett, aminek a szabályos kezelése rendkivül körülményes volt. Ezért áttértünk a ^{131}I-dal jelzett szemcsés anioncserélő mügyanta alkalmazására. A repesztőhomokkal azonos szemcsenagyságu Dowex II, Allachion vagy Varion AB márkáju, 3 liter gyantára 6 mCi ^{131}I-ot viszünk, a gyantát szinig öntve a NaI vizes

1. ábra

Radioaktiv izotóp felhasználása kutmunkáknál

oldatával. A jelzett gyantát ólomburkolatu csőkonténerben szállitjuk a kuthoz, és a menetes cső két végén levő vakanyát lecsavarva a csőkonténert beiktatjuk egy repesztő agregát nyomóvezetékébe. Technológusok véleménye szerint a munkálatok mintegy felénél előre nem várt vagy nem ellenőrizhető folyamatot lehetett megbizhatóan észlelni. A módszer megbizhatóan mutatta, hogy helyesen végezték-e a nagyértékü munkát, történt-e repedés, továbbá, hogy a rétegsor általában két réteg határfelületén reped.

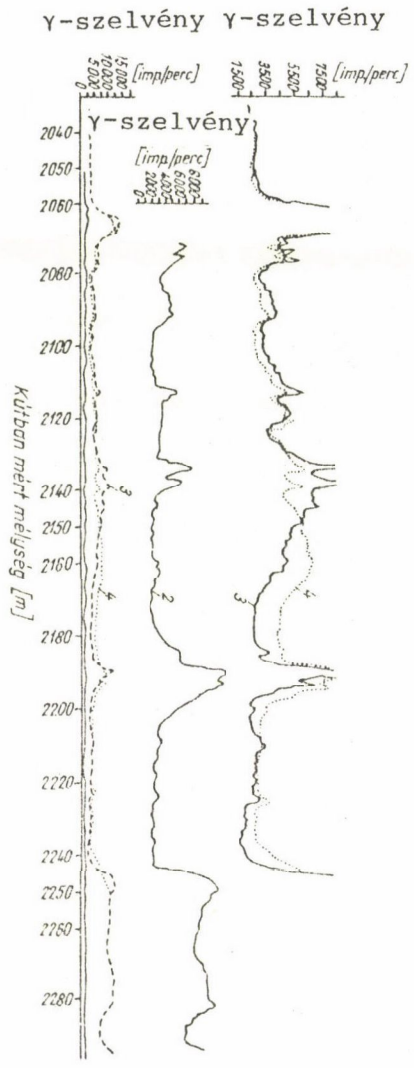
A nagylengyeli mészköves geológiai szerkezet kutjainak nyitott szakaszában a legujabb időkig többször alkalmazott radioizotópos technológia az injektivitási profil fölvétele. Nyitott rétegsorban a folyadékkommunikációs részek pontos helyének és relativ erősségének meghatározására először 1956-ban alkalmaztuk az injektivitási profilt. Ennél a módszernél szemcsés anioncserélő mügyantahordozón kötött ^{131}I-ot juttattunk a kutba, vizes szuszpenzió formájában, ahol a vizből leginkább ott szürődött ki, ahol a legnagyobb a réteg folyadékbevétele. Nagy vizbevételü nagyobb repedések ilyen hordozó formával - mészköves szerkezet kutjainak nyitott szakaszában végzett vizsgálataink szerint - nem vizsgálhatók. A jelzett folyadékot statikus módszerrel szoktuk elkésziteni. Tiszta felületü vizben elkeverjük az izotópot, állandó keverés közben beleszórjuk a gyantát, és az állandóan kevert vizes szuszpenziót a gyanta 1,34 m/min ülepedési sebességénél nagyobb szivattyuzási sebességgel tápláljuk a kutba. Mészköves mezőnél 30 méteres nyitott szakaszra 1 mCi aktivitást és 225 g 0,3-1,0 mm-es szemcseösszetételü anioncserélő mügyantát szoktunk alkalmazni. A módszert homokköves mezőnél, csövezett kutban is kipróbáltuk, és jól értékelhető adatokat kaptunk. A ^{131}I-ot itt is NaI vizes oldatként alkalmaztuk. A módszer az üregeket a vizbevételi helyekhez hasonlóan jelzi, ezért a jelzőanyag nyomása előtt alap-γ-szelvényen kivül mindig lyukátmérő-szelvényt is felveszünk. Az első ilyen injektivitási profilszelvényt a 2. ábra tünteti fel.

Esetenként az iszapelszökés helyét kisebb aktivitásu ^{131}I-dal jelzett folyadékkal határozzuk meg, elhelyezés után mérve a jelzett folyadék nivójának csökkenését.

Az utóbbi években a radiokarottázs és a radioizotópos kutvizsgálat mellett kifejlődött a harmadik sugárzó anyagot alkalmazó terület is; az ipari radiográfia.

A két kőolajipari gépgyárnál és a Kőolajvezeték Vállalatnál, más iparágakhoz hasonlóan, már régebben használtak röntgenkészülékeket, ezek azonban nehézkesek voltak, főleg az uj olaj- és gázmezők feltárása után megindult nagy méretü országos távvezetékrendszer épitése megkezdésénél. Az iparág több vállalatánál sürgetővé vált a könnyü és gyors radioizotópos hegesztési varratvizsgálat rendszeresitése, a nehéz terepi viszonyok között. 1967 juniusában végeztük az első üzemi méréseket a KGM üzemeiben akkor már alkalmazott TG-150-es

tipusu munkatartókkal ^{192}Ir-mal. γ-dózisfilmmel, önleolvasó dózismérővel és hordozható sugárzásmérővel felszerelve vettük fel az első év 1146 felvételét. 1968-ban két uj radiográfus technikus végezte az OGIL-nál a hegesztési varratok vizsgálatát. 1969-ben a vizsgált varratok száma már 9525 volt. Jelenleg az OGIL-nál 20 fő foglalkozik ipari radiográfiával, olajipari társvállalatok számára. Közben a Kőolajvezeték Vállalat is bevezette a ^{192}Ir-mal történő varratvizsgálatot. Jelenleg 30 fős csoport dolgozik hivatásszerüen izotóppal. A Kőolajipari Gépgyár Budapesten szintén kifejlesztette radioizotópos részlegét, és jelenleg 25 főt foglalkoztat ezen a területen. Az Alföldi Kőolaj- és Földgáztermelő Vállalat szintén megszervezett egy jelenleg 15 fős radiográfiai részleget. Mint iparági társvállalat, a DÉDÁZ Szegeden 5 fős radiográfiai részleget foglalkoztat. Jelenleg az iparágban hivatásszerüen 95 ember foglalkozik 5-40 Ci erősségü, γ-sugárzó ^{192}Ir-radioizotóppal. 70 geofizikus dolgozó terepi viszonyok között dolgozik 10 Ci-s Po-Be neutronforrással. Az OGIL izotóplaboratóriuma négy dolgozójával együtt a szénhidrogén-termelő iparágban jelenleg összesen 169 ember dolgozik hivatásszerüen sugárzó anyaggal.



2. ábra

NL-68-as γ-szelvény

1. Alap γ-szelvény;
2. Radioizotópnak kutba történő benyomása utáni első γ-szelvény felülről lefelé;
3. Második γ-szelvény alulról felfelé;
4. Harmadik γ-szelvény alulról felfelé

A fenti üzemi munkákhoz már 1958-bam beszereztünk két pár M-22 tipusu szovjet távmanipulátort, és az Országos Atomenergia Bizottságtól kapott félmillió forintból a Dunántuli Kőolajipari Gépgyárnál forrófülke-vasszerkezetet, laboratóriumi asztalokat és vegyifülkéket készitettünk, hogy az iparági izotópos munkákat szakszerüen és biztonságosan végezhessük. Az izotóplaboratóriumi feladatoknál is elsősorban az üzemi, ezek között pedig a geofizikai jellegü munkákat részesitettük előnyben, mivel ezeknek a legnagyobb a gazdasági

hatása. Eleinte a kutvizsgálatokhoz szükséges ^{131}I osztását és konténerezését a Csepel Vas- és Fémművek, majd a Müszaki Egyetem Kémiai Technológiai Tanszékének radioizotóp-laboratóriumában, 1963-tól a Bányászati Kutató Intézet izotóplaboratóriumában végeztük, ólomfal mögötti tükrökkel és távpipettákkal, majd M-22-es távmanipulátorral, cinkbromidos fülkében. Megfelelő számu konténerrel mindezideig zavartalanul, szakszerüen és biztonságosan lehetet biztositani az izotópellátást. Ugyancsak ezekben a forrófülkékben szerelik a sokszor 30-50 Ci-s radiográfiai ^{192}Ir zárt sugárforrásokat a munkakonténerbe, minden OKGT-hez tartozó vállalat számára is. Hasonlóképpen itt történik a γ-szondák ^{60}Co-forrásának időnkénti szerelése. Az izotóplaboratóriumi szolgálat a geofizikai részlegekkel közösen készitette a hordozható és a stabil szondahitelesitőket kobaltklorid oldattal, illetőleg számitás alapján kimért és homogenizált U, K és Th sókkal, érzékeny detektorokkal mérve és több egységben megadva az aktivitásokat. A geofizikai részlegekkel közös tervezésben elkészült az épület belsejében felállitható és igy téli munkára is alkalmas geofizikai modellkut. Ebben 2 m átmérőjü és magasságu modelltestben lehetett méréseket végezni különféle porozitásu és hidrogéntartalmu közegekben és különböző béléscsőátmérőknél, az üzemi neutron-γ-szelvényezések értelmezéséhez. A béléscső mögötti cementpalást egyenletes elhelyezkedésének ^{131}I-dal homogénen jelzett cementtel végzendő ellenőrzéséhez elkészült egy forgó ólompalástos GM-szonda, és a laboratóriumi kalibrálás után üzemi méréseket is végeztek a müszerrel. Természetes γ-szelvények értékelésével foglalkozott az izotóplaboratóriumi részleg furási magminták természetes γ-aktivitásának mérésével, sugárspektrum alapján mennyiségileg megadva az U, K és Th komponenseket. Ennek érdekében elkészült egy nagy felbontóképességü szcintillációs detektor higany-, vas- és ólomárnyékolással. 1970 végéig 440, 1971-ben 240, 1972-ben kb. 350 mintát mértünk meg.

Foglalkozott még a laboratóriumi szolgálat a viz és az olaj közti határnak a rétegben való kimutatásával /^{24}Na-mal jelzett nafténsavval/ az olaj és a viz áramlási viszonyainak vizsgálatával mészkőmintákban /^{131}I-dal jelzett vizzel/, továbbá az üzemek által beküldött mélyvizminták természetes radioaktivitásának rendszeres meghatározásával /a szárazmaradék mérése alapján/. Korrózió ellenőrzésére különféle üzemekben berendezések és vezetékek falvastagságát mértük. Felkészültünk az olajoldható ^{131}I rendszeres üzemi alkalmazására és a rétegsavazás, valamint a vegyszeres rétegkezelés helyének radioizotópos meghatározására. A terepi viszonyok között 10 Ci erősségü Po-Be neutronforrással dolgozó geofizikai csoportok számára neutron-filmdozimetriát rendszeresitettünk. 1969-től az öt csoportot folyamatosan ellátjuk filmmel, és havonta a DKFÜ*-nek 40, az NKFÜ**-nek 100 filmet dolgozunk fel. A laboratói-

---

*Dunántuli Kutató és Feltáró Üzem

**Nagyalföldi Kutató és Feltáró Üzem

riumban több éven át foglalkoztunk tricium méréstechnikájának kidolgozásával olajmezők mélyvizei mozgásviszonyainak meghatározására. A legcélszerübb méréstechnika kiválasztása érdekében 10 ismert triciumtartalmu mintát minden módszerrel megvizsgáltunk. Mivel az őstengeri eredetü vizek triciumtartalma 0-100 TU, két utat választottunk meghatározására. Egyiknél ezt a kis értéket igyekszünk elérni három fokozatu elektrolizissel bedusitottuk a mintát, és a triciumot gázfázisban etilén formájában, 98%-os hatásfokkal meghatároztuk. Az 1840 ml-es vizmintát 3 fokozatban, 900-as bedusitási tényezővel, kb. 2 ml-re elektrolizálva, a 6 dpm/mg fajlagos aktivitásu mintát 3333 dpm/mg fajlagos triciumaktivitásra dusitottuk. Ezen munkaigényes uton érhettük csak el a minimális detektálható aktivitásértéket. A sok mintának időre történő megvizsgálására az üzemben egycsatornás EKCO, mig a laboratóriumban nagyobb érzékenységü kétcsatornás Tri-Carb spektrométert választottunk, mindkettőt naftalinos dioxán szcintillátorfolyadékkal. Az elektrolizáló telepeket és a gázfázisu triciummeghatározó berendezést elkészitettük, és felkészültünk az üzemi alkalmazásra. Megkezdtük az üzemi méréseket a jelzőanyag elhelyezése előtt.

A laboratóriumban megkezdtük a stabil izotópokkal végzendő munkát is. Az MI-1305 tipusu általános tömegspektrométert M-86 tipusu, 100-as tömegszámig alkalmazható, geológiai célra szerkesztett készülékkel cseréltük ki. Kidolgoztuk a $^{13}C/^{14}C$ arány meghatározását olaj- és kőzetmintákban, és hozzákezdtünk a deutérium meghatározásához. 1968-ban 100, 1969-ben 176 mintából határoztuk meg ezt az arányt, geokémiai célra.

A laboratóriumi szolgálatot /két vegyész, egy elektromos, egy fizikus és egy segéderő/ a Bányászati Kutató Intézet izotóplaboratóriumában helyeztük el, "társbérletben". Jelenleg három vegyész és egy laboráns dolgozik itt.

A mérési adatokról, tervekről és az irodalomról minden év végén kutatói jelentés készült, amit az érdekelt társvállalatoknak is megküldtünk. Ezen izotópos munkák felszereltsége az üzemben biztonsági szempontból is kielégitőnek mondható, mivel a geofizikai részlegek γ- és neutrondózis-filmekkel, sugárzásmérőkkel, a radiográfusok pedig egyéni dózismérővel, γ-filmmel és hordozható sugárzásmérővel vannak ellátva. A laboratóriumnak megvannak az alapmüszer-tipusok, és az elmult évek során ezeket szükség esetén a társvállalatok is igénybevették. Az avulás itt érezhető, és emiatt a kőzetaktivitást jelenleg a Geofizikai Intézetnél kell mérnünk, odaszállitva a nehéz detektort.

A sugárzó anyaggal foglalkozók szakképzésére mindig nagy gondot fordítottunk. Nem indultak meg ezek a munkák, mig minden vállalattól legalább egy müszaki el nem végezte az izotóptechnikai tanfolyamot. Az olajipari vállalatok müszakijai számára ez volt egyben az első bentlakásos továbbképző tanfolyam. Jelenleg a geofizikai területen is több tanfolyamot végzett müszaki dolgozik, és radiográfiát is csak radiográfiai tanfolyamot végzett dolgozó folytathat. A szaktanfolyam és a rövid felezési idejü ^{131}I általános használata

biztositotta a főleg kezdetben nagy tisztasággal végzett munka mellett, hogy ennyi idő alatt ilyen, aránylag sok munka mellett elszennyeződés nem fordult elő. A laboratóriumban kidolgozott uj technológiákat csak az Egészségügyi Minisztérium és a Bányamüszaki Felügyelőség jóváhagyása után kezdtük alkalmazni. Az iparágban végzett e munkákat a más államokban folyókkal összehasonlitva megállapithattuk, hogy pl. a Szovjetunióban és a Román Szocialista Köztársaságban hasonló szervezetben folynak, és kb. ugyanazzal foglalkoznak.

Az elmult évtized során mind a geofizikai részlegektől, mind a laboratóriumi szolgálattól egy-két szakember járt a Szovjetunióban, a Román Szocialista Köztársaságban, a Lengyel Népköztársaságban és a Német Demokratikus Köztársaságban. Mindkét részlegtől egy-két publikáció jelent meg és előadás hangzott el hazai szakmai körökben és külföldön szervezett konferenciákon. Fő feladatnak mindkét részleg az üzemek problémáinak megoldását és az iparági gazdaságosságot tartotta, és igy munkája nem vált öncéluvá.

Amint az 1. ábra mutatja, az izotópos kutvizsgálat évente többmillió forint megtakaritást jelent. A radiográfia hasonló nagyságrendü, a nukleáris geofizika nagyságrenddel nagyobb megtakaritást hoz. A meleglaboratóriumi előkészitésre és kiszolgálásra forditott összeg az üzemi folyamat végén általában megtizszereződik.

A nukleáris geofizikában a közeljövőben még sok lehetőség rejlik. Egykét módszer a kutvizsgálat területén és egyéb területen is ismeretes még. A radiográfia a közeli jövőben iparági szinten nőni fog.

A teljesség kedvéért meg kell emlitenünk, hogy a legfőbb nehézséget a társbérleti elhelyezés jelentette, továbbá az, hogy a módszerek elterjesztésében a velük közvetlenül foglalkozóknak nincs elegendő hatásköre. A külföldhöz hasonlóan ezen a téren legtöbbet a vállalatok müszaki vezetői tehetnek, amint azt az alföldi cementtető-mérések elterjedése is mutatja. Nehézséget jelentett a laboratóriumi szolgálatban a geofizikus hiánya is. Sugárvédelmi szempontból jelentős, hogy mig egyes vállalatok müszakijai a radioizotópokban elkerülendő bajforrást látnak, addig a rendszeresen alkalmazóknál, a balesetek hiánya miatt, nem tulajdonitanak különösebb jelentőséget sugárvédelmi megbizottjuk munkájának.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 244-251

NUKLEÁRIS MÓDSZEREK TÉRHÓDITÁSA A MÉLYFÚRÁSI GEOFIZIKÁBAN

Czeglédi I. Márhoffer J.

Országos Kőolaj- és Gázipari Tröszt, Geofizikai Főosztály, Budapest

A n-n, n-γ, a termikus és epitermikus neutronos, valamint a γ-γ szelvényezés fejlődése Magyarországon. Impulzus üzemű neutrongenerátorok. Lyukműszerek.

Распространение ядерных методов в геофизическом глубоком бурении
Цегледи, И., Мархоффер, Й.

Развитие применения n-n-, n-γ, γ-γ каротажа, а также каротажа, применяющего термические и эпитермические нейтроны. Генераторы нейтронов импульсного режима. Приборы для каротажа.

Nuclear Techniques in Geophysical Deep Boring
Czeglédi, I., Márhoffer, J.

The development of n-n-, n-γ, γ-γ, thermal and epithermal neutron logging in Hungary. Impulse neutron generators. Well instruments.

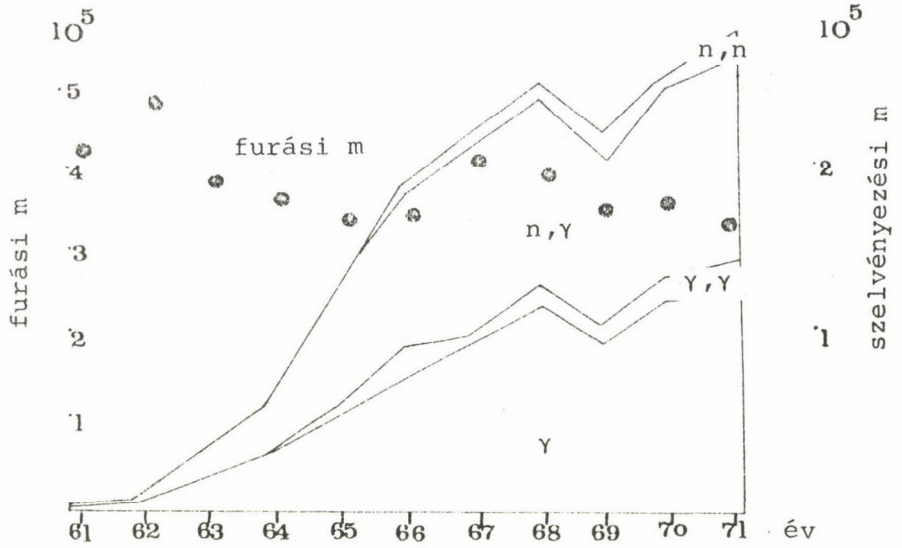
A mélyfurási geofizika /karottázs/ a furólyukak vizsgálatának fizikai módszereit összefoglaló tudományág. E módszereket a 30-as évek elejétől alkalmazzák a gyakorlatban. Kezdetben e módszereken kizárólag a kőzetek elektromos ellenállásának a mérését értették. A II. világháboru kitörésének időszakában vetődött fel, és az USA-ban és Szovjetunióban a 40-es évek második felében kezdett elterjedni az a gondolat, hogy a kőzetek természetes radioaktivitását a furólyukban mérjék. Pontecorvo olasz fizikus javaslatára ugyanez időben kezdődött meg a gerjesztett sugárzások vizsgálata.

Magyarországon mintegy husz év késéssel, az 50-es évek közepén, a Szovjetunióból importált berendezésekkel indultak meg a nukleáris mélyfurási geofizikai mérések. E mérések bevezetésének aktualitását a nagylengyeli repedezett karbonátos tárolók vizsgálata adta, melyeket az akkor rendelkezésre álló karottázsmódszerekkel még kvalitative sem lehetett értelmezni. A helyzet érzékeltetésére megjegyzendő, hogy e nagylengyeli probléma késztette a magyar szakembereket a laterolog szelvényezési eljárás kifejlesztésére is.

Az 1955-ben beszerzett és szovjet szakemberek segitségével üzembe helyezett berendezés lehetővé tette a kőzetek természetes radioaktiv γ-sugárzásának /természetes γ-/ és neutronokkal gerjesztett γ-sugárzásának /neutron-γ/ folyamatos mérését. E módszerekkel már az első /1956-os/ évben több mint 20 000 méter szelvényt regisztráltunk, ami 1 km furásban átlag 83 méter szelvény felvételét jelentette. A szakmai tapasztalatok hiánya, a nukleáris módszerekkel megoldható feladatok ki nem elégitő ismerete, valamint az eszközök és tartalék alkatrészek beszerzési nehézségei miatt, a kezdeti fellendülés után e módszerek alkalmazása leszükült, és 1961-re mélypontra zuhant. Az 1961. évi radioaktiv szelvényezési volumen alig haladta meg a 2000 métert, ami az összes karottázsszelvényezésnek kevesebb mint 0,5 %-a.

Az 1957 körül megalakult Országos Atomenergia Bizottság Olajipari Szakbizottsága, részint szovjetunióbeli és romániai tanulmányutak biztositásával segitette a szükséges szakmai tapasztalatok megszerzését, részint operativ segitséget nyujtott a hiányzó tartalékalkatrészek, elsősorban detektorok beszerzésében.

Az OAB támogatása és az olajipari szakemberek erőfeszitései következtében e módszerek hamar kikerültek a hullámvölgyből, és már 1965-re a nukleáris szelvényezés meghaladta a 100 000 métert. E mérések volumene azóta is folyamatosan növekszik, és a furási tevékenység komoly csökkenése ellenére is elérte a 275 000 métert /1. ábra/, ami 1 km furásra vetitve 827 métert jelent.



1. ábra

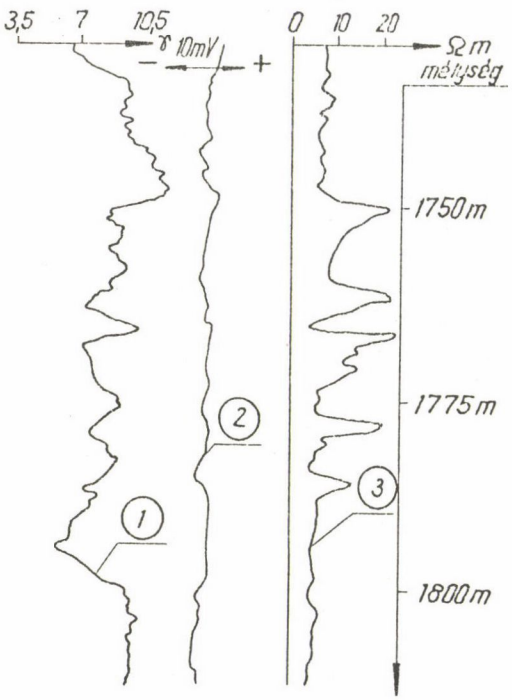
A nukleáris szelvényezési és mélyfurási tevékenység alakulása az OKGT-ban

Az okokat is keresve megállapithatjuk, hogy a szelvényezési választék növekedése, a neutroneljárás több változatának és a γ-γ-eljárásnak a megjelenése, valamint a nukleáris módszerekkel megoldható geofizikai feladatok körének lényeges bővülése idézte elő e gyorsütemü fejlődést.

A különféle radioaktiv mérésfajták más és más fizikai paramétert kükröznek. Igy az epitermikus neutron mérés a közeg neutronlassitását, a termikus neutronmérés a környezet neutronbefogási hatáskeresztmetszetét, a γ-γ-mérés pedig a közeg sürüségét fejezi ki alapvetően. Tehát a radioaktiv mérések választékának növekedésével uj fizikai paraméterek meghatározása, azaz egyre ujabb feladatok megoldása válik lehetővé.

Az első feladat, amely a nagylengyeli kutatásnál jelentkezett, a rétegsor tagolása és a porózus képződmények kiválasztása volt. A rétegsor tagolásának és réteghatár kijelölésének nukleáris módszereit az egyéb geofizikai eljárások mellett ma is széleskörüen alkalmazzák, kibővitve egyes esetekben a földtani profilok szerkesztéséhez szükséges mezőn belüli, illetve szerkezetek közötti radioaktiv vezérszintek /reperek/ kijelölésével és nyomonkövetésével.

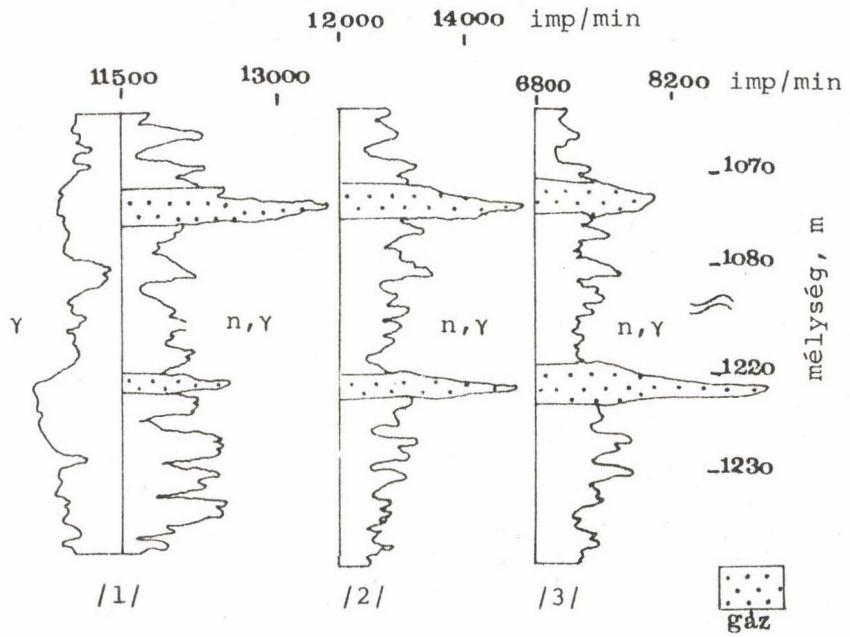
A nukleáris módszereknek az az előnye, hogy béléscsövezett furásokban és elektromosan nem vezető iszapban is alkalmazhatók, ami a többi módszer felhasználását általában lehetetlenné teszi. A természetes γ-módszer további előnye a PS és ellenállás-módszerekkel szemben az is, hogy indikációja nem függ sem a furóiszap, sem a rétegviz fajlagos ellenállásától, igy az elektromos módszerekre hátrányos esetekben is jól alkalmazható. Erre mutat be példát a 2. ábra.



2. ábra

Rétegsor felbontás természetes γ, /1/, PS /2/ és optimális laterológ /3/ görbékkel

Jelentős fellendülés következett be a nukleáris módszerek elterjedésében a hajduszoboszlói, battonyai, pusztaföldvári gáztárolórétegek sikeres kimutathatósága és az olajtól történő elkülönithetősége eredményeként. Ezt illusztrálja a 3. ábra.

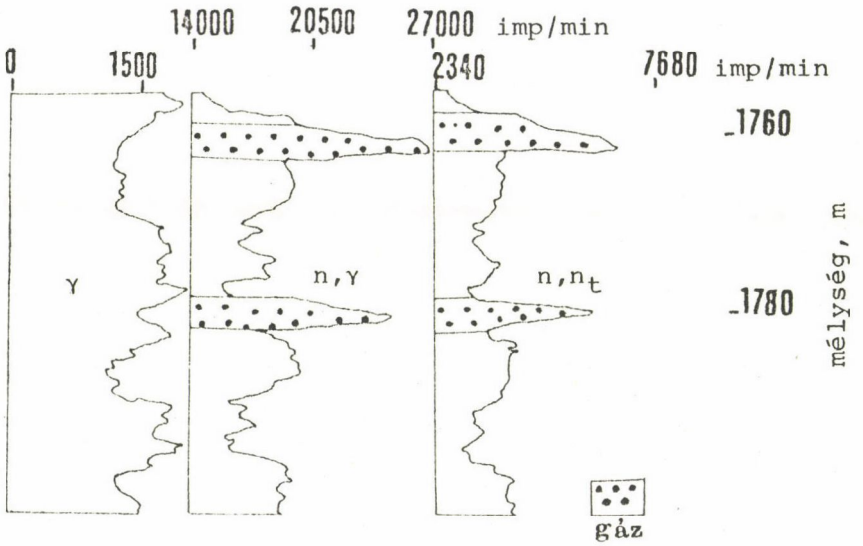


3. ábra

Különböző időben / /1/-1965 V, /2/-1965 VII, /3/-1966 IV/ felvett n,γ szelvényezéssel meghatározható a rétegek gáztelitettségének változása

A gáztároló zónák kimutatásának igénye vetette fel a már emlitett neutron-neutron-módszerek bevezetésének szükségességét. E specifikus feladatok megoldására a 60-as évek közepétől széleskörü metodikai tevékenységet folytattunk a neutron-γ-eljárás további tökéletesitésére, a neutron, termikus neutron és az epitermikus neutronmódszerek kidolgozására. E tevékenység eredménye adott lehetőséget a másodlagosan felhalmozott gáztárolók, az ugynevezett kóborgázok felkutatására, és változásának vizsgálatára /4. ábra/.

Minőségileg uj feladatot jelentett az egyes kőzetfizikai paraméterek /porozitás, agyagtartalom/ kvantitativ meghatározása. Ehhez szükség volt részint a γ-szelvényezési eljárás bevezetésére,/ a 60-as évek második felében/, részint az alkalmazott nukleáris szelvényezési eljárások hitelesitésének és kalibrálásának megoldására, valamint a kőzetmagokon mért nukleáris paraméterek laboratóriumi meghatározására. Ez utóbbi két feltétel teljesitéséhez jelentős támogatást kaptunk az OAB-től. Az OAB közremüködésével és közvetlen anyagi támogatásával kezdtük el az első hitelesitő kut épitését és a laboratóriumi mérésekhez szükséges müszerek beszerzését. Komoly, aktuális szakmai



4. ábra

A rétegek gáztároló szakaszainak kijelölése különböző nukleáris szelvények segitségével

segitséget jelentettek a radioaktiv hitelesitése tárgyában szervezett tanulmányutak. Például a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 1965 évi szimpóziumán nemzetközi mércével mérhettük fel tevékenységünket, és további célok megvalósitását tüzhettük ki feladatul.

1967-68-ban megépitettük az NKFÜ-ben a természetes γ- és neutron-γ- szelvényező eszközök hitelesitő berendezését. Ezt követően, az Eötvös Loránd Geofizikai Intézet közremüködésével, 1971-ben, üzembehelyeztük a DKFÜ-nél a γ-γ-hitelesitő etalonokat. Hasonló berendezés üzembeállitása a NKFÜ-nél folyamatban van. A hitelesitett berendezések használata lehetőséget adott többek közt kőzetek porozitásának meghatározására karbonátos összletekben is.

Az OGIL* szelvényezési eljárást dolgozott ki a homokkőtárolók agyag-, aleurittartalmának és a kőzetek porozitásának együttes becslésére, a természetes γ-szelvény és a PS-szelvény kombinációjából. A DKFÜ-nél módszert dolgoztak ki karbonátos tárolók elsődleges és másodlagos porozitásának meghatározására a neutron-γ-, és laterolog szelvények kombinációja alapján.

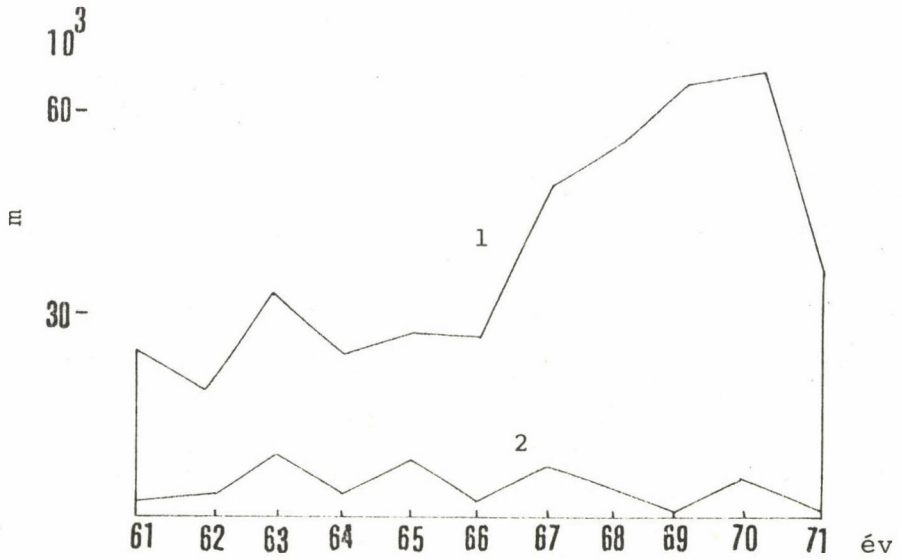
Az algyői olajtelepek lemüvelésének ellenőrzése uj feladatkört jelöl ki a mélyfurási geofizika számára. E területen is nagy a nukleáris módszerek jelentősége. Az áramlás- és hozammérések mellett komoly feladat hárul elsősor-

*Orsz. Kőolaj- és Földgázbányászati Ipari Kutató Laboratórium

ban a neutron-módszerekre a "vizfüggöny" nyomozásában, a fázishatárok mozgásának kimutatása területén.

A termelésigeofizikai tevékenység a nukleáris módszerek területén is uj eljárásokat igényel. Legjelentősebb közülük az impulzusüzemi neutrongenerátorok alkalmazása, mely lehetővé teszi a neutron-élettartamon alapuló szelvényezést. Az e célra beszerzett szovjet müszereket, a hazai egyéb müszertechnikai adottságok miatt, részlegesen módositani kellett, ez lassitotta a módszer bevezetését. Az átalakitásokat elvégeztük, a berendezés üzemi kipróbálása folyamatban van.

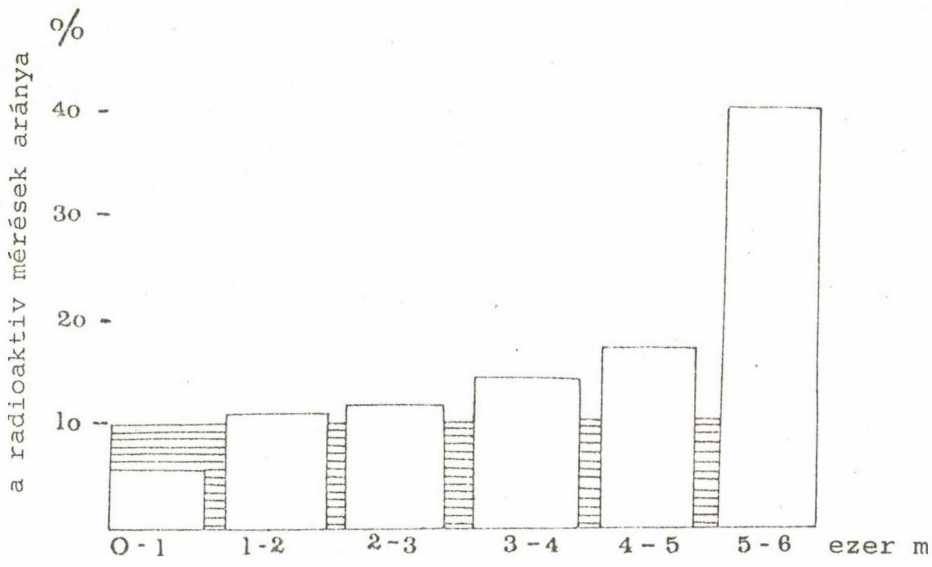
Önálló feladatkört jelent a furás mélyitése, illetve kiképezése során a furólyukba juttatott nyitott izotópok detektálása. E téren sok, különféle feladat jelölhető meg. Ilyenek többek között a furás mélyitése közben jelentkező iszapelnyelő rétegek kimutatása, a cementpalást tetejének meghatározása, pótlólagos cementezések, a rétegrepesztés helyének megállapitása. E munkák volumenét nehéz számokkal kifejezni. A legnagyobb tevékenység az izotópos cementezések területén volt; ez a 60-as évek végén érte el a maximumot: évi 65 000 métert. A szónikus cementszelvényezés bevezetésével ez rohamosan csökken. Az egyéb nyitott izotópos módszereket esetenként használják, amint az 5. ábra is mutatja.



5. ábra

Izotópos cementmérési tevékenység /1/ és egyéb izotópos mérési tevékenység /2/ alakulása

A felsorolt feladatok áttekintéséből látható, hogy a nukleáris módszerek mind több probléma megoldására alkalmasak, és hogy bonyolultabb földtani, műszaki körülmények között jelentőségük erőteljesen növekszik. A 6. ábrán látható a nukleáris módszerek felhasználási arányának alakulása a furási mélység függvényében. Mig a felszinközeli zónákban a radioaktiv mérések aránya alig éri el a 10 %-ot, addig nagy mélységekben a mérések mint 1/3-t teszi ki.



6. ábra

Nukleáris módszerek alkalmazásának aránya a furási mélység függvényében

Az elmult évtized alatt az olajipari mélyfurási geofizika a kezdetben kizárólagosan használt NGGK-tipusu radioaktiv berendezésektől eljutott a teljesen korszerü szcintillációs detektorokkal üzemelő berendezésekig. Importbeszerzés és hazai müszerfejlesztés eredményeként lényegesen kibővült az eszközök választéka. Önálló müszaki fejlesztés eredményeként elkészült a világviszonylatban is egyedülálló, 270 ^{o}C hőtürésü, radioaktiv karottázs-berendezés.

A közelmultban készültek el és kisérleti próbamérésekre várnak a termelőcsőbe is lebocsátható, 42 mm külső átmérőjü radioaktiv lyukmüszerek. Kisérleti méréseket végzünk a két paraméteres γ-γ- szelvényező berendezésekkel, melyek alkalmazása lehetővé teszi a furóiszap és iszaplepény hatásának kiküszöbölését, a kőzetek tároló tulajdonságának pontosabb meghatározására. Az

olajipar megbizásából fejlesztették ki a jelenleg terepi kipróbálás alatt álló, energiaspektrumok felvételére is alkalmas digitális rögzitő berendezést, amely uj alkalmazási területeket nyit meg a nukleáris geofizika előtt.

A külföldön és hazánkban is folyó intenziv fejlesztés, uj szelvényezési eljárások létrehozása /mint például az oxigénszelvényezés/, mind arra mutat, hogy a nukleáris módszerek további térhóditása napirenden van. Meggyőződésünk, hogy az OAB 20 éves fennállása alkalmával megrendezendő, hasonló jellegü ülésen azt jelenthetjük, hogy a nukleáris mérések fajtája és abszolut mennyisége megsokszorozódott, részarányuk pedig az összmérésekben az évi 11,1 % helyett, elérte a 20 %-ot.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 252-264

RADIOAKTIV IZOTÓPOK ALKALMAZÁSA A KŐOLAJFELDOLGOZÁSBAN 1962 - 1972

Vajta L-né*, Bálint T.**, Péczeli B.***
*Nagynyomásu Kisérleti Intézet Ásványolaj Minőségellenőrző Intézete, Budapest
**Magyar Ásványolaj- és Földgázkisérleti Intézet, Veszprém
***Dunai Kőolajipari Vállalat, Százhalombatta

A Magyar Ásványolaj- és Földgázkisérleti Intézetben és a Nagynyomásu Kisérleti Intézetben kidolgozott analitikai módszerek és müszerek. Nyomjelzéses mérástechnikai és ipari vizsgálatok. Néhány elem meghatározása

Применение радиоактивных изотопов в обработки нефта
Вайта, Л., Балинт, Т., Пецели, Б.

Аналитические методы и приборы, выработанные в Венгерском нефте-газовом исследовательском институте и в Исследовательском институте высоких давлений. Исследования в области измерительной техники и в промышленности методом меченых атомов. Определение некоторых элементов.

Application of Radioactive Isotopes in Petroleum Refinery
Vajta, L., Bálint, T., Péczeli, B.

Analytical methods and instruments, developed at the Hungarian Petroleum and Gas Research Institute and at the Research Institute of High Pressures. Metrological and industrial uses of tracer technique. Determination of some elements.

Bár a radioaktiv izotópok alkalmazása fokozott müszaki és biztonságtechnikai felkészültséget igényel, az elmult lo esztendőben ezen a területen is számos értékes tevékenységről számolhatunk be, melyeket a kőolajfeldolgozással kapcsolatban végeztek. A végzett munkát két csoportban tárgyaljuk:

1. laboratóriumi, szakaszos és üzemi, folyamatos mérési módszerek és müszerek;
2. izotópok alkalmazása a kőolajfeldolgozás technológiájában.

LABORATÓRIUMI, SZAKASZOS ÉS ÜZEMI FOLYAMATOS MÉRÉSI MÓDSZEREK ÉS MŰSZEREK

A Magyar Ásványolaj- és Földgázkisérleti Intézetben /MÁFKI/ 1958-ban indultak meg az izotópalkalmazással kapcsolatos kutatások, az analitikai osztályon. Kezdetben a zárt sugárforrásokkal végezhető laboratóriumi elemző módszerek bevezetésére, illetve uj módszerek kidolgozására került sor, majd az 1964-ben létesült "C"-tipusu laboratóriumban megkezdődtek a nyilt izotópos munkák is.

A szakaszos laboratóriumi módszerek és a velük kapcsolatos készülékek közül a β-abszorpción alapuló hidrogéntartalommérés [1-7], a ^{55}Fe-sugárabszorpción vagy $^{3}H/Zr$ target alkalmazásán alapuló oxigén-, kén-, klórelemzés [1-5, 8-11] és cink-, kobalt-, bárium- és ólomadalékok ^{109}Cd-sugárabszorpciós meghatározása [4,11,12] jelentős. Ezek a módszerek gyorsaságukkal és a szokványos kémiai módszereket elérő, egyes esetekben tul is haladó pontosságukkal tünnek ki. A módszerek legfontosabb jellemzői az 1. táblázatban találhatók meg.

1. táblázat

Laboratóriumi sugárabszorpciós elemző módszerek főbb jellemzői

Sugárforrás /jel, a sugárzás fajtája, effektiv energia, felezési idő/	^{90}Sr-^{90}Y β,2,18 MeV 28 év	^{55}Fe K,5,9 keV 2,6 év	$^{3}H/Zr$-target kb. 8 keV 12,3 év	^{109}Cd K, 22 keV 1,3 év
Ajánlott felületi sürüség g/cm^2	o,35	o,38	o,72	4,3
Az elemzés hibája /σ/ a vizsgált elem abszolut százalékában	o,o2	o,16 O o,o13 S o,o12 Cl	o,35 O o,o29 S o,o26 Cl	o,o57 S o,o48 Cl o,o11 Co o,oo4 Pb o,o1 Ba és o,o1 Zn
A sürüségmérés megengedett hibája g/ml	1.10^{-4}	20.10^{-4}	30.10^{-4}	-
Egy mérés időszükséglete, min.	10	5	5	5

Tekintettel arra, hogy a kőolajipar müveleteinek nagyrésze a termék elemi összetételének jelentős megváltozásával jár, a tudományos vizsgálatban nélkülözhetetlenek az elemi összetételre vonatkozó adatok, mégis vizsgálatuk viszonylag kevéssé terjedt el, mert a szokásosan hozzáférhető égetéses elemzési módszerek hosszadalmasak, végrehajtásuk szakaszos, és az eredmények pontossága nem is mindig biztositható. Érthető tehát, hogy ezen a területen sikeresen alkalmazzák a radioaktiv sugárelnyelésen alapuló módszereket, mert ezekkel ezek az egyébként fáradságos vizsgálatok kis mintamennyiségből néhány perc alatt elvégezhetők.

Hasonlóan nehéz területe a kőolajipari analitikusoknak a kőolajtermékek adalékolásánál az adalékra jellemző kation meghatározása. Igen nagyjelentőségü tehát pl. a ^{109}Cd-sugárabszorpciós báriummeghatározó müszer, amellyel, elkerülve a hosszadalmas gravimetriás báriummeghatározást, lo perc alatt tájékozódni lehet az adalék mennyiségéről.

Fontos technológiai jelentőségük miatt külön ki kell emelni a kénmeghatározó készülékeket, mert egyes technológiai berendezéseknél csak az igen gyors elemzési módszerek teszik lehetővé, hogy azonnal beavatkozhassanak az üzem menetébe.

Külön ki kell emelni azt, hogy az irodalomban található hasonló eljárásokkal szemben a MÁFKI kutatói igen nagy sulyt helyeztek az általuk szerkesztett készülékek paramétereinek optimalizálására, a készülékek pontosságára, az adódó hibák lehetőség szerinti kiküszöbölésére.

A sugárabszorpciós módszerek főbb jellegzetességeiből /roncsolás nélküli, egyszerü mérés, nagy stabilitás, stb./ következik, hogy előnyös tulajdonságaik különösen alkalmassá teszik folyamatos üzemi müszereknél való alkalmazásra. Folyamatos üzemi elemző készülékkel, amely viszonylag egyszerü felépitésü, állandóan lehet tájékozódni a termék kéntartalmáról. Legfontosabb probléma a mérés sürüségérzékenységének megszüntetése megfelelő mechanikus sürüségkompenzációs módszerek kidolgozásával [13-19]. A folyamatos elemző készülékek két alaptipusát sikerült kifejleszteni. A gázolaj-kénmentesitő üzem termékellenőrzése céljára ^{3}H/Zr-sugárabszorpciós elven alapuló folyamatos kénelemző berendezést [18-20] fejlesztettek ki a MÁFKI-ban; üzemi próbái a szőnyi és százhalombattai kőolajfinomitókban folyamatban vannak.

Ugyancsak kőolajipari üzemek számára dolgozták ki a ^{109}Cd sugárabszorpciós ólomadalék-, illetve bárium- és cinktartalom-mérő berendezést [21] benzinek, illetve motorolajok adalékolásának folyamatos ellenőrzésére. E készülék főbb adatait a 2. táblázat tartalmazza. Kitünik, hogy mindkét esetben sikerül a szakaszos elemző módszerek alapján üzemi követelményeknek eleget tevő készüléket kifejleszteni.

2. táblázat

Folyamatos /üzemi/ sugárabszorpciós készülékek főbb jellemzői

Jellemzők	Folyamatos kén-meghatározó készülék	Folyamatos ólomadalék-koncentrációmérő készülék
Méréstartomány	o - 3 s% S	o - 3 g adalék/l
A mérés hibája /σ/	± o,o2 s% S	± o,o3 g adalék/l
Megengedett sürüségingadozás, g/ml	± o,1	± o,o8
Az elemzendő folyadék áramlási sebessége	$2o^{+8o}_{-15}$ l/h	2o ± 2o l/h
nyomása	$2o^{+1o}_{-2o}$ ata	5 ± 5 ata
hőmérséklete	2o ± 3o C^o	2o ± 4o C^o

Külön meg kell még emliteni a MÁFKI-ban az utolsó években megindult nyomjelzéses munkák széles területét.

Komplex elegyek vizsgálata uj radio-gázkromatográfiás módszer kidolgozásához vezetett [22-24], amelynek jellemzője, hogy a gázkromatográfiás elválasztással egyidőben és azonos helyen megy végbe - izotópcsere révén - a cserélhető atomokat tartalmazó komponensek radioizotopos jelölése, ami által az elválasztott összetevők minőségi azonositása is nagymértékben egyszerüsödik. Több komponensü, illékony anyagok, gázkromatográfiás elemzésére jól bevált a metán vivőgázzal végezhető elválasztás, amelynél a metán, mint töltőgáz is szerepel, lágy-β-sugárzó izotópok /^{3}H, ^{14}C, ^{35}S/ átáramlásos, proporcionális csővel történő mérésénél[25].

Olefinek kobalt-karbonil-hidrid hatására lejátszódó izomerizációjának mechanizmusát triciummal jelzett katalizátor és a reakció folyamán időnként vett minta radio-gázkromatográfiás elemzésével sikerült tanulmányozni.[25-26] Ugyanez a módszer vitt közelebb a szénhidrogének pirolizisének közelebbi megismeréséhez, n-hexán-l /^{14}C/ pirolizistermékei aktivitásának vizsgálatával.

Továbbiakban meg kell emlitenünk, hogy a MÁFKI számos, nem a kőolaj-feldolgozó ipar területére eső problémában is segitséget nyujt. Ezek közül említést érdemel a kőolaj és a széndioxid kölcsönhatásának vizsgálata[27], berendezések és müveletek nyomjelzéstechnikai vizsgálata a péti Nitrogénmüvek kisérleti oxoszintézis-üzemében,[28] a bitumenes izotópmentesitő berendezés hatásfokának mérése ^{24}Na-izotóppal[29], stb.[30,31]. Legujabb munkáik az üzemi légszennyezés mérésével kapcsolatosak[32].

A Nagynyomásu Kisérleti Intézeten /NAKI/ belül 1967. végén kezdtek radioizotópos mérésekkel foglalkozni, egyelőre a Bányászati Kutató Intézetben biztositott munkahelyen. A pétfürdői technológiai osztályon folyamatban lévő gázolaj-kéntelenitési kisérletekhez gyors tríciumos kénmeghatározó berendezést állitottak üzembe, amely kialakult technológia esetén rutinmérésre is alkalmas, és folyamatos mérőhelyre is beépithető. Sugárforrása 13 Ci aktivitásu triciumtarget. A mintatartó 2 ml térfogatu berilliumlemezzel van lezárva, termosztálható. Az összeállitott berendezés 1,18 Å átlagos hullámhosszu fékezési röntgensugárzás abszorpciójának mérését teszi lehetővé.

Foglalkoztak szintmérő szerkesztésével folyadéktartályokhoz és a fázishatár, illetve a folyadékszint mérésének gyakorlati vizsgálatával. A Dunai Kőolajipari Vállalatnál /DKV/ jelentkező problémákhoz igazitották a megoldásokat, foglalkoztak sugárforrások méretezésével, számitásával, blendézésével, védelmével, detektorszereléssel, stb. Próbaméréseket is végeztek a kis méretü propános aszfaltmentesitőn.

A szerzett tapasztalatok alapján a DKV 2,8 m átmérőjü fekvőhengeres ólomtetraetil-tartályához állitottak össze gyujtószikra nélküli áramkörü mérő- és detektorrendszert. Megszerezték a müszeres méréshez szükséges hatósági hozzájárulásokat. Biztositották a csatlakozó szerelvényeket is. A folyadékszint érzékelésére a tartály végén felszerelt uszóra ^{60}Co-sugárforrást terveztek, magát a detektort a tartályon kivül csörlőzhető kocsira szerelték fel, de a müszert DKV-ban még nem helyezték üzembe.

Foglalkoztak továbbá aktivációs analizissel, a Bányászati Kutató Laboratórium neutronforrása segitségével. A mérések célja nagy tisztaságu fémek aktiválása és indikálása.

Kenéstechnikai modellkisérletekre is előkészültek. Mintadarabokat aktiváltak, és rögzitették a kedvező hütési, mérési és felhasználási időtartamokat. A kenéstechnikai vizsgáló berendezésekhez felhasználható próbadarabok aktiválásához a Bányászati Kutató Intézet sugárforrása nem volt elegendő, ezért ezt az MTA Izotóp Intézeténél rendelték meg.

Kenőolajok és adalékok minősitését négygolyós készülékben kezdték meg, radioaktiv acélgolyók alkalmazásával. Méréseket végeztek nagy számu, 2 mCi aktivitásu csapágygolyó felhasználásával, ötfajta adalékolt kenőolajat alkalmazva. Tisztázták a radioaktiv mérések során fellépő zavaró effektusokat, és az aktivitásértékek azonosságát. Céljuk, hogy radioaktiv méréstechnikát dolgozzanak ki, meghatározzák a kopástermékek mennyiségét, mérjék az alsó és felső golyókra áthordott fémmennyiségeket, és megvizsgálják az adatok kenéstechnikai szempontból való hasznosságát.

Az alkalmazástechnika másik vizsgálható területe a hütő és kenő emulziók funkcionális viselkedése. Erre a célra alkalmas módszeren is dolgoznak. A vizsgálatot a reaktorban aktivált esztergakésekkel végezték. A mérések egyidőben kvalitativ jellegüek voltak, és kiegészitették a sokoldalu egyéb vizsgálatokkal is. A mérési adatok jellemezték a kezdeti és a beállt relativ kopásértékeket.

Tervbe vették, hogy nemcsak kenéstechnikai, hanem tüzeléstechnikai és korróziós kérdéseknél is megkezdik a radioizotópos méréseket [33].

A kőolajtermékek és más szénhidrogének kéntartalmának meghatározásával tricium fékezési sugárzásának abszorpciója alapján Lévai B., Fodorné Csányi P. és Vajtáné dr. Králik Zs. foglalkozott [34-35]. 1963-ban megjelent közleményükben kisérletileg is igazolták a módszer hasznosságát: o,1-3% között a kéntartalom ±o,o4 abszolut % pontossággal mérhető. Megvizsgálták az ^{55}Fe izotóppal végzendő vizsgálat lehetőségét is, de az általuk szerkesztett müszert olcsóbbnak és a tricium felezési idejének hosszabb volta miatt a triciumot az elemzésre megfelelőbbnek találták. A szobahőfokon szilárd termékeket toluollal higitották. Bár ebben az esetben viszonylag nagyobb pontatlanságra számitottak, az eredmény meglepően jó volt.

Farkas M. és Fodorné Csányi P. foglalkoztak [36] benzin ólomtetraetil tartalmának meghatározásával, szintén a tricium fékezési sugárzásának abszorpciós módszerével. A gyakorlati mérések pontossága elérte a magyar szabványban előirt ólomjodidos módszerét; előnye a lényegesen kisebb mérési idő, hátránya a bizonytalanabb berendezés. A módszer, az ólom igen nagy tömegabszorpciós együtthatója miatt, alkalmas a benzin ólomtetraetil-tartalmának meghatározására. Ismerni kell azonban a benzinben lévő minden komponens tömegabszorpciós együtthatóját. Az együtthatók meghatározásával az idézett irodalom szintén foglalkozik.

A BME Kémiai Technológiai Tanszékén foglalkoztak a kőolajtermékek vanádiumtartalmának aktivációs analizissel való meghatározásával és a kőolajtermékek vanádiummérlegének felállitásával [37]. Az analiziseket a desztillációs termékeknél és atmoszférikus maradékoknál az egyidejüleg feldolgozandó valamennyi kőolajféleségnél elvégezték.

Ugyancsak itt végezték el a Magyarországon feldolgozott kőolajok frakciói és desztillációs maradványai vanádium- és aluminiumtartalmának meghatározását, aktivációs analizissel [38]. Az adott kisérleti körülmények mellett az érzékenység vanádiumnál o,ol µg/ml, aluminiumnál o,1 µg/ml volt.

Foglalkoztak a Tanszéken a Magyarországon feldolgozott kőolajok maradványában levő nátrium és mangán meghatározásával, aktivációs analizissel[38]. Az adott kisérleti körülmények között a nátriummeghatározás maximális érzékenysége 0,5 ppm, a mangáné 0,01-0,2 volt.

IZOTÓPOK ALKALMAZÁSA A KŐOLAJFELDOLGOZÁS TECHNOLÓGIÁJÁBAN

CSEPPFELHORDÁS MEGHATÁROZÁSA RADIOIZOTÓPPAL VÁKUUMDESZTILLÁCIÓS ÜZEMBEN

Az egyik, azóta megszüntetett magyarországi finomitó vákuumdesztillációs tornya erős terheléssel dolgozott, s rendellenes minőségü, paraffinos, nehéz párlatot gyártott. A kőolajipar és a Csepeli Vasmü izotóplaboratóriumának munkatársai vizsgálták, hogy a rendellenesség tulterhelés vagy más egyéb hiba következménye [40]

A paraffinos pakura feldolgozásánál a vákuumtorony legalsó oldaltermékének a keményaszfalt-tartalma nagyobb volt az előirtnál. Emiatt feltételezték, hogy a torony evaporációs zónájából cseppfelhordás következtében bitumencseppek kerülnek a nehéz paraffinos párlatba. A torony üzemadataiból számitott várható cseppfelhordás a szennyeződés mértékét nem indokolta. Az ellenőrzésre radioizotópos módszert alkalmaztak, azon meggondolással, hogy ha a desztillálandó pakurába olyan jelzett vegyületet kevernek, amely olajoldható, a desztilláció körülményei között stabil és nem illékony, annak kvantitative a fenéktermékben kell maradnia. Ha tehát ilyen esetben az oldaltermékben aktivitás lép fel, az csak cseppfelhordás eredménye lehet. A pakura jelzése kétféle módon történhet:

a/ nagyobb mennyiségü pakurába a desztilláció előtt radioaktiv izotóp vegyületet kevernek és a desztilláció folyamata alatt állandóan mérik az aktivitás megoszlását;

b/ a berendezésben feldolgozás alatt álló pakurát impulzusszerüen jelzik, és igy vizsgálják a radioaktiv anyag koncentrációját a bitumenben, ill. a paraffinos nehézolajpárlatban. Ez utóbbi esetben koncentrációmaximumot mérnek a két termékben, az aktivitási görbe alapján. Az összetartozó bitumen- és paraffinos nehézolajminták aktivitásértékéből a cseppfelhordás kiszámitható. A vizsgálatokra az impulzusmódszert választották, kisebb aktivanyag igénye miatt.

A vizsgálatok alapján legcélszerübbnek a ^{60}Co-, ill. ^{65}Zn-naftenát alkalmazása mutatkozott, mert mindkét izotóp sugárzása szcintillációs számlálóval viszonylag nagy hatásfokkal, a minták minden külön előkészitése nélkül mérhető. Az impulzusonként beadagolt aktivitás 5o mCi volt.

Az izotópot oldat formájában a desztillációs csőkemence kilépő vezetékébe, közvetlen a desztillációs torony evaporációs zónája előtt adagolták be, CO_2-gázzal történő belöketéssel.

A mintázást a két termék kilépőjénél végezték az izotóp beadagolásának pillanatától egy órán keresztül 2 percenként, majd 10-10 mintavételt félóránként s ujabb 10-10 mintavételt pedig óránként.

Az aktivitási görbe lefutásából és maximumából a torony hét különböző terhelése mellett számitották a cseppfelhordási értékeket.

Az eredmények a 3. táblázatban találhatók.

3. táblázat

Sorszám	Betáplált pakura kg/időegység	Paraffin nehézolaj-párlat kg/időegység	Összes párlat %	Cseppfelhordás %
1	9 18o	89o	74	o,14
2	9 38o	43o	71	o,17
3	1o 5oo	55o	78	o,1o
4	11 ooo	83o	75	o,14
5	12 ooo	88o	71	o,22
6	12 8oo	47o	75	o,2o
7	13 ooo	9oo	81	o,25

A kisérletek azt bizonyitották, hogy növekvő terheléssel nő a cseppfelhordás mértéke.

Az adott vizsgálatokra vonatkozóan az eredményeket a számitásokkal összevetve arra az eredményre jutottak, hogy a torony a vizsgált terhelések mellett még lényeges cseppfelhordási veszély nélkül üzemeltethető.

Ennek alapján további, egyéb irányu vizsgálatok bebizonyitották, hogy az adott paraffinos nehézpárlat minőségének romlását más hiba okozta. Ennek kiküszöbölése után a vákuumtorony megnövekedett bedolgozás mellett is zavartalanul üzemelt, igy a vizsgálat eredménye a vákuumdesztilláció kapacitás növelése volt.

Itt kell megemlékezni arról, hogy az MTA Központi Kémiai Kutató Intézetében a laboratóriumi desztillációs kolonnában bekövetkező cseppelragadást vizsgálták radioaktiv nyomjelző technikával [41]. Jelzett NaI-dal végzett vizsgálatok igazolták a cseppelragadásra Carey által kidolgozott összefüggést.

KEVERÉSI VIZSGÁLATOK A KŐOLAJIPARBAN RADIOIZOTÓPOK FELHASZNÁLÁSÁVAL

A kőolajiparban a termékek előállitásánál és adalékolásánál igen gyakran lépnek fel keverési problémák. A kis mennyiségü adalékoknak nagy mennyiségü termékhez történő, szakaszos hozzákeverésének egyenletessége a megfelelő keverési idő és keverési technológia függvénye.

Először két ilyen jellegü problémát vizsgáltak meg radioizotópokkal [42] :

a/ etilbenzinben az etilfolyadék optimális szakaszos elkeverésének és időszükségletének megállapitása adott berendezésben és

b/ higitott bitumen tapadásgátló adalékkal történő elkeverése.

Mindkét esetben az adalékanyagot jelezték kőolajtermékben oldódó aktiv anyaggal, és a jelzett adalékot a termékbe bekeverve a folyamat időben és helyben különböző mintáinak aktivitáskülönbsége alapján határozták meg az optimális keverési időt és technológiát.

A jelzőanyag ^{64}Cu-naftenát tartalmu naftènsav volt, mely mindkét termékben /benzin ill. petroleummal higitott bitumen/ jól oldódott. Az alkalmazott aktivitás kisérletenként 1 Ci volt. A vizsgálat kimutatta, hogy a higitott bitumen adalékolása után 1,5 órai keverés megfelelő homogenitást biztositott. Az etilkeverés a vizsgált időpontban müködő berendezéssel csak gazdaságtalan időtartamu keveréssel volt teljes hatékonyságu, ezért a technológiát és berendezést módositani kellett.

Az MTA Izotóp Intézete fenti munkákon kivül foglalkozott a motorbenzinetilezés technológiájának folyamatos vizsgálatával is.

IN-LINE ETILFLUID-BEKEVERŐ BERENDEZÉS VIZSGÁLATA

A DKV in-line bekeverő berendezésének vizsgálatánál az Intézet értékelhető eredményeket nem kapott, mert részben a keverőtartályban, részben a tartály utáni csővezetékben nagy mennyiségü oldhatatlan festékiszap halmozódott fel, mely a naftenát formájában bevitt jelzőizotópot adszorbeálta. A vezeték tisztitására és a vizsgálat megismétlésére nem volt lehetőség.

A 10 000 m^3-es tárolótartályok keverőberendezésének hatásosságáról megállapitották, hogy már 6 órás keverés nagymértékü homogenizálódást biztosit a tartályba adagolt 6400 m^3 benzin és rátöltött 2200 m^3 jelzett ezilbenzin közt. Ennek eredményeként az etilfluid koncentrációjának szórása 10 literes tételben 2 rel. 3-ra csökkent.

Ebbe a témacsoportba tartozik a bolygókeverős gépzsirgyártó duplikátorok keverési effektusának vizsgálata is, melyet szintén a MTA Izotóp Intézete végzett.

A Lardoline Kőolajipari Vállalat felkérésére az Intézet megvizsgálta a gépzsirgyártásnál a különféle fémszappanok és a kenőolaj homogenizálásának folyamatát, részben a melegkeverési, részben a hütési szakaszban. Megállapitották, hogy az üzem által alkalmazott keverési időtartam /kb. 80-120 perc melegkeverés és ugyanennyi hidegkeverés/ bőségesen elegendő a termék egyenletes összetételének biztositására, sőt, a hütés egyidejü javitásával az adott berendezés teljesitménye még fokozható is. A kész gépzsirok szappantartalma szük határok közt /$\pm$ 0,3 illetve $\pm$ 0,5 %/ ingadozott.

KŐOLAJTERMÉK-VEZETÉKEKEN VÉGZETT RADIOIZOTÓPOS VIZSGÁLATOK

A kőolajtermékeket szállitó távvezetékek széleskörü alkalmazásának elterjedése előtt szükségessé vált annak vizsgálata, hogy az azonos vezetékben egymás után szivattyuzott, különféle kőolajtermékek fázishatárán a távolság és szivattyuzási intenzitás függvényében milyen keveredés várható.

A kérdés vizsgálatára kézenfekvőnek mutatkoztak a radioizotópos módszerek. A kellő számu adat összegyüjtésére több vizsgálatot végeztek.

A vizsgálatok alapvetően két irányuak voltak:

a/ nyilt izotópokkal nyomjelzéses módszerrel,

b/ külső zárt sugárforrás alkalmazásával a különféle sürüségü termékek sugárzásos abszorpciójában fellépő különbség vizsgálatával.

Az első vizsgálatok idejében még termék-távvezeték nem állt rendelkezésre, ezért a fázishatár elkeverését pillanatszerüen adagolt, olajoldható aktiv anyag különböző szállitási távolságon mért aktivitáseloszlási görbéje alapján szimulálták[43]. A kőzeg nyers kőolaj volt, melyet $CH_3-CH_2-^{131}I$-dal /pillanatszerü adagolással/ jeleztek. Ez egy 200 mm átmérőjü kőolaj-távvezeték 39 km hosszu szakaszán 1,5 m/s áramlási sebesség mellett, 6-7 m^3 keveredett anyagot eredményezett. A második kisérletet[44] ugyanazon távvezeték hosszabb szakaszán végezték. Az eredményeket az alábbi 4. táblázatban adjuk meg.

4. táblázat

A mérés helyének távolsága a beadagolás helyétől km	Áramlási m/perc	Sebesség m^3/perc	Keveredés a mérés alapján m^3
122	63,3	1,9	14,6
167	70,0	2,17	17,6
206	72,0	2,23	19,7

A mérési adatok jól egyeznek azon irodalomból ismert adattal, hogy a keveredés mértéke a kiindulóponttól való távolság négyzetgyökével arányos.

Nyilt izotóppal másféle keveredésvizsgálatot is végeztek termék-távvezetéken. Egy 6" átmérőjü, 68 km hosszu termék-távvezetéken benzin és gázolaj egymásutáni szivattyuzásánál vizsgálták a keveredés mértékét, mégpedig oly módon, hogy a két terméket felváltva 30-30 m^3 mennyiségben szivattyuzták egymás után. A közbenső terméket /pl. benzin két gázolajdugó között/ teljes mennyiségben jelezték. Nyomjelző izotópként ^{140}La-t használtak, La-naftenát formájában[45].

A vizsgálat az előbbivel közel azonos eredményt hozott.

Tekintve, hogy a nyilt izotópokkal végzett munka, bármilyen gyors felezési idejü izotópot használtak, állandó egészségügyi problémákat vet fel, a további kisérleteket külső zárt sugárforrás sugárzásának - a szállitott termék sürüségétől függő - abszorpciója mérésével volt célszerü elvégezni.

A további vizsgálatok már 120 km hosszu, 6" átmérőjü termékvezetéken történtek, melynek feladata a finomitóból felváltva motorbenzin és gázolaj szállitása volt a felhasználó terület központjában fekvő terméktároló telepre[46].

A 154 mm átmérőjü csőnél a sugárforrás 100 mCi ^{137}Cs volt, az észlelő GM-csöves durva sürüségmérő. Az egymás után szivattyuzott két termék sürüsége: motorbenzin 0,76 g/cm^3, gázolaj 0,86 g/cm^3. A mérőrendszerrel a fázishatáron a sürüségváltozás regisztrálható volt. Fenti mérőrendszer /GM-csöves durva sürüségmérő/ 0,04 g/cm^3 sürüségkülönbséget képes észlelni, ami az adott értékek mellett kiválóan megfelelő. A GM-csöves sürüségmérő helyett EMG 1872 ratemeter felszerelésével 0,01 g/cm^3-re növelhető a mérés érzékenysége, és lényegesen kisebb sürüségkülönbség mérésére is alkalmas.

A méréssorozat bebizonyitotta, hogy nukleáris technikával végzett sürüségméréssel az azonos termékvezetéken egymásután szivattyuzott és különböző sürüségü anyagok határfelülete és keveredett mennyisége előnyösen mérhető.

A rendszer továbbfejlesztve jelzésre, - de távmüködtetés impulzusaként is - alkalmazható.

A csővezetéken végzett munkákhoz sorolandó az MTA Izotóp Intézetének elakadt csőgörények felkutatására végzett munkája.

^{60}Co sugárforrással felszerelt keresőgörénnyel az Intézet több görénykeresést végzett, igy pl. a Szajol és Százhalombatta közötti fehéráru-távvezetéken, továbbá az országos földgázvezeték két különböző szakaszán.

A kőolajfeldolgozó ipar területén és müködésével kapcsolatban egyéb lehetőségek nyilnak radioizotópokkal végzendő munkálatokra.

Szép példája ennek az MTA Központi Kémiai Kutató Intézetében a gépzsirok kenőképességének vizsgálatára felhasznált radioaktiv indikációs módszer[47]. A vizsgálat során 14 különféle kenőzsir adatait mérték ki, és bebizonyitották, hogy módszerük alkalmas a gépzsir kenőképességének indikálására.

A kőolajfeldolgozó ipar gyors ütemü, mennyiségi és minőségi fejlődése, müködésének egyéb területén is igényli a radioizotópos módszerek alkalmazását. Ezek a területek nem tartoznak szorosan a Kőolajipari Izotópalkalmazási Szakbizottság munkakörébe: a roncsolásmentes szerkezeti anyagvizsgálat, hegesztési minősitések, falvastagság vizsgálata, korróziós ellenőrzés; de ebbe a csoportba tartoznak egyes szabályozó és mérőmüszerek is, melyek import-

ként kerültek az országba, és radioizotópokkal müködnek. Ebbe a csoportba tartoznak a DKV-nál alkalmazott egyes tömegáramlás-mérők sürüségérzékelő tagjai.

Összefoglalva, a kőolajfeldolgozó ipar területén az elmult 10 esztendő alatt több érdekes és értékes vizsgálat, fejlesztés és alkalmazás történt radioizotópok felhasználásával, melyek az iparág fejlődéséhez hozzájárultak, és látható, hogy az igy kialakult módszerek, müszerek és eljárások szerepe a jövőben is jelentős lesz.

IRODALOM

1. *Bálint, T.*, MÁFKI Közl. 1 5 /1960/
2. *Bálint-Kerényi*, Az analitikai kémia III. konferenciája, Prága, 1959. szeptember
3. *Bálint-Orsós*, Energia és Atomtechnika 14 237 /1961/
4. *Bálint T.*, Kőolajtermékek radioaktiv sugárabszorpciós elemzése. Müszaki doktori értekezés. Veszprém, 1962.
5. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 39 161 /1963/
6. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 39 171 /1963/
7. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 41 341 /1964/
8. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 26 203 /1961/
   Előadva az Analitikai Kongresszuson, Budapest, 1961. április 24-29.
9. *Bálint, T.*, Chimie et Industrie, 92 No 3. 97 /1964/
10. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 41 355 /1964/
11. *Bálint, T.*, A radioaktiv sugárabszorpciós elemzés és annak alkalmazása folyékony kőolaj- és petrolkémiai termékek elemi összetételének mérésére. Kandidátusi disszertáció. Veszprém, 1967.
12. *Bálint, T.*, Még nem publikált adatok
13. *Bálint, T.*, Előadás a "Fizikai kémiai módszerek alkalmazása a kémiai analizisben" c. konferencián, Budapest, 1966. április 20-23.
14. *Bálint, T.*, Acta Chim. /Budapest/ 52 243 /1967/
15. *Bálint-Laky*, 153.549 sz. magyar szabadalom
16. *Bálint-Kerényi*, ACHEMA-Tagung. Frankfurt /Main/ 1967. jun. 21-29. /előadás/ DECHEMA-Monographien, Bd. 61.5.9. Verlag Chemie GmbH. Weinheim, 1968.
17. *Bálint- Kerényi*, MÁFKI Közl. 10 9 /1969/
18. *Bálint-Gersey*, MÁFKI Közl. 11 9 /1970/
19. *Bálint-Gersey*, 159.457 sz. magyar szabadalom
20. *Bálint, T.*, Folyamatos kénmeghatározó berendezés leirása és kezelése. /Müszerkönyv/ Veszprém, 1970.
21. *Bálint, T.*, Folyamatos ólomadalék-koncentrációmérő berendezés leirása és kezelése. /Müszerkönyv/ Veszprém, 1970.
22. *Bálint-Szepesy*, J. Chromatog. 30 433 /1967/

23. *Bálint-Szepesy*, MÁFKI Közl. 9 9 /1969/
24. *Bálint-Szepesy*, 154.404 sz. magyar szabadalom
25. *Bálint-Hanel*, MÁFKI Közl. 12 17 /1971/
26. *Hanel É*, Nem publikált adatok.
27. *Bálint, T., Bélafiné-Décsy*, J-49/1970. sz. MÁFKI jelentés
28. *Bálint-Hanel-Laky*, Kém. Közl. 32 151 /1969/
29. *Bálint-Hanel-Magyar*, Nem publikált adatok.
30. *Bálint-Hanel-Kerényi*, J-73/1970. sz. MÁFKI jelentés
31. *Hanel É*, J-36/1971. sz. MÁFKI jelentés
32. *Bálint-Iglewski-Stumpfhauser*, 7586 sz. szabadalmi bejelentés
33. Nagynyomásu Kisérleti Intézet kézirati közlés
34. *Fodorné, Csányi P., Korányi, Gy., Kapcsi, O.*, M.Kém.F., 67 491 /1961/ Előzetes közlemény
35. *Lévai, Gy., Fodorné, Csányi P., Vajtáné, Králik Zs.*, M.Kém.F., 69 136 /1963/
36. *Farkas, M., Fodorné, Csányi P.*, M.Kém.F., 69 407 /1963/
37. *L. Vajta, Gy. Pálmai, I. Szebényi, G. Tóth*, Period. Polytechn. 10 Nr. 3. 269 /1966/
38. *L. Vajta, Gy. Pálmai, I. Szebényi, G. Tóth*, Period. Polytechn. 11 Nr. 3-4. 275 /1967/
39. *Gy. Pálmai, L. Vajta, I. Szebényi, G. Tóth*, Period. Polytechn. 13 Nr. 1-2. 99 /1969/
40. *Vajta, L., Varga K., Péczeli, B., Fodor, J.*, Acta Chim. /Budapest/ 25 /1960/ 459
41. *Lengyel T.*, M.Kém.L. 14 /1959/ 314
42. *Balla, B., Nagy, K.*, Keverési vizsgálatok az etilbenzin és a higitott bitumen gyártásával kapcsolatban OAB Izotóp Intézet 16. kiadvány, 1965.
43. *J. Fodor, B. Péczeli, L. Vajta*, Messung der Mischung von Strömungsflüssigkeiten in Rohölfernleitungen mit Hilfe von radioaktiven Nukliden. Isotoptechnik 2 /1963/ 77
44. *Fodor J., Péczeli B., Vajta L.*, OAB Izotópalkalmazási Szakbizottság Kiadványa 3 /1962/ 1/2, 304
45. *Balla B.*, Távvezetéken szállitott kőolaj és kőolajtermékek keveredése. OAB Izotóp Intézet jelentése 1965.
46. *Balla B., Vereczky L., Nagy K.*, Ásványolajtermékek folyamatos fajsulymérése a Százhalombatta-Szajol távvezetéken, izotópos módszerrel OAB Izotóp Intézet jelentése 1965.
47. *Lengyel T.*, Radioaktiv indikáció a gépzsirok kenőképességének vizsgálatában. II. Gépzsir Ankét Bp. 1960. április.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 265-269

AZ AUTORADIOGRÁFIA HIBAFORRÁSAI I.

Kozma L., Bartha L.
MTA Müszaki Fizikai Kutató Intézet, Budapest

Az artifaktok oka. Védőréteg az emulzió kémiai korróziója ellen. Az autoradiográfiás jelenségeknek az artifaktok okozta feketedéstől való megkülönböztetése

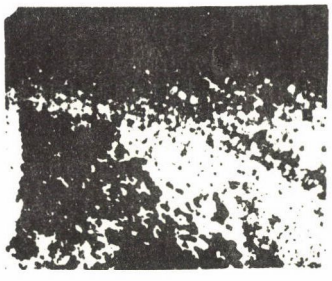
Источники ошибок в авторадиографии I.
Козма, Л., Барта, Л.

Причины артифаков. Защитный слой против химической коррозии эмульсия. Методы различения почернений от артифактах от явлений авторадиографии.

Error Sources in Autoradiography I.
Kozma, L., Bartha, L.

The causes of artifacts. Application of protective coatings to avoid chemical corrosion of the emulsion. Methods of the distinction between the autoradiographic phenomena and the blackening caused by the artifacts.

Az autoradiográfia, a radioaktiv izotópok szilárd testekben fennálló eloszlásának fotográfiás elven müködő detektálási módszere, több hibaforrást tartalmaz. Ezek a - gyüjtőnéven artefaktoknak nevezett - hibák részben mechanikai, részben kémiai hatásokra vezethetők vissza /mechanogramok, kemogramok/. Közös jellemzőjük, hogy az ezüsthalogenid emulzió előhivása után általában különálló, sok esetben igen intenziv, éles határu foltokként jelentkeznek /1. ábra/, s ezzel mind a sugárzás okozta feketedéstől, mind a film homogén fátylától megkülönböztethetők.



1. ábra

Autoradiogram ^{59}Fe-nek diffuzió utján végbement eloszlásáról, kovácsolt és rekrisztallizált W fémben. Az éles határvonalu, sötét foltokat a film elektrokémiai korróziója okozta. Nagyitás: 20x

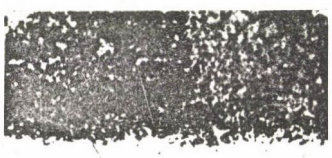
Annak ellenére, hogy az artefaktok általában megkülönböztethetők, célszerü keletkezésük kiküszöbölése, mert nagy optikai sürüségük miatt az autoradiogram kvantitativ kiértékelését erősen zavarhatják, vagy akár meg is akadályozhatják.

Az irodalom nem tartalmaz kellő részletességü összefoglaló munkát az artefaktok keletkezésének okairól és elháritásuk módjairól, ezért Kodak AR. 10 autoradiográfiás stripping film felhasználásával e kérdést részletesebb vizsgálat tárgyává tettük.

Az ezüsthalogenid tartalmu, zselatin alapu fotoemulziók, különösen pedig a csupán néhány mikron vastagságu stripping filmek, nedves kezelésük során különösen érzékenyek mind a kémiai, mind a mechanikai hatásokra.

Kemogramok keletkezésének veszélye különösen redukáló szerekkel, elsősorban az ezüstbromidot redukáló fémekkel történő érintkezés során igen nagy. Egyes szerzők[1,2] valószinünek tartják, hogy hidrogénperoxid képződik a mintára felvitt nedves film száritása és az exponálás alatt, s feltételezik ennek szerepét az előhivható gócok létrehozásában.

Az ezüstnél kevésbé nemes fémek redukálhatják az ezüst ionokat /2. ábra/, de növelhetik vagy csökkenthetik is az emulzió érzékenységét. Igy Grosskreutz[3] megfigyelte, hogy az aluminium, amelyen az autoradiogramok készitése nagy nehézségeket okoz, az előhivás során fokozza a film feketedését. Kivánatos, hogy az ilyen reaktiv fémeken végzett autoradiográfiás vizsgálatok esetén vakpróbaként inaktiv mintán is végrehajtsuk az összes müveleteket. Még ilyenkor is találkozhatunk váratlan hatásokkal /2. ábra/.



2. ábra

A fekete foltok az inaktiv Fe-W ötvözet és az emulzió közötti elektrokémiai reakció következménye. Nagyitás: 20x

Általános szokás, hogy a kémiai eredetü artefaktorokat ugy küszöbölik ki, hogy a redukáló fémfelület és a fényérzékeny emulzió közé vékony, szigetelő réteget iktatnak közbe, amely elég vastag az elektroncsere megakadályozására, de nem tul vastag ahhoz, hogy elnyelje a β-részeket, illetve, hogy tul nagy távolságot tartva a minta és a film között, a keletkezett képet életlenné tegye, a felbontóképességet csökkentse.

Mig korábban ilyen célra kollódium, paraffin, nyersgumi stb. bevonatokat alkalmaztak, később a különféle müanyag-bevonatok kerültek előtérbe. Blundall és Rotblatt[4], valamint Guidotti és Passalacqua[5] p-metil-metakrilát 1%-os kloroformos oldatát alkalmazva 1 mikronnál vékonyabb, jó tapadásu és szigetelőképességü réteggel vonták be mintáikat.

Chapman-Andresen[6] számos anyag rendszeres vizsgálata után az izobutilos oldatból készitett 0,1-0,3 mikron vastagságu nylon bevonatot tartotta a legalkalmasabbnak.

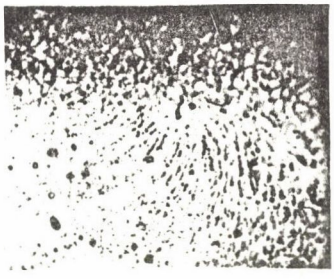
Sawicki és Darzynkiewicz[7] PVC réteg alkalmazását javasolta, Studnic és Meljukov[8] pedig zselatint, krómtimsót, nátriumszilikátot és timolt tartalmazó vizes oldatból kapott védőbevonatról számolt be. Saját tapasztalataink szerint a Si tartalmu bevonatok érintkezése a stripping filmekkel nem kivánatos.

A Braun[9] által javasolt szigetelést, amely három különböző rétegből áll /PVC, kollodium, zselatin/, rossz tapadási sajátosságai miatt, fémmintáink esetében nem találtuk kielégitőnek.

Kedvező tulajdonságunak bizonyult a Holt Products Ltd. "Clear Sealer" kereskedelmi elnevezésü anyagának 1%-os kloroformos oldatából előállitott szigetelő réteg, amelyet, ha még egy krómtimsóval cserzett zselatin hártyával[10] bevontunk, biztositani tudtuk a stripping film jó tapadását. Ez nagyban megkönnyiti az előhivási müveletek elvégzését. A két réteg együttes vastagsága nem haladja meg az 1 mikront.

A film megfelelő tapadása a próbatest felületén mechanikai okokra visszavezethető feketedési effektusok kiküszöbölése miatt is lényeges tényező. A kis szilárdságu filmben, száritása közben, egyenlőtlen tapadás következtében, az összehuzódás során igen heterogén mechanikai feszültségek ébrednek, amelyek mértéke helyenként akkora lehet, hogy a film ezüstbromid kristályszemcséit deformálhatja. E deformáció hatására a szemcse megvilágitás nélkül is előhivhatóvá válik. A cserzett zselatinrétegen történő egyenletes tapadás megakadályozza az ilyen összehuzódási egyenetlenségek létrejöttét.

Hasonló okokból kerülni kell, hogy a film felvitelekor a próbatest és a film között légbuborékok maradjanak /3. ábra/.



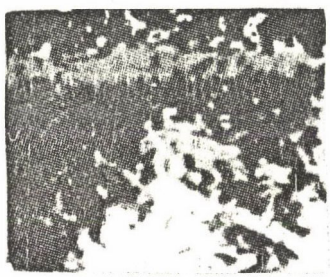
3. ábra

Az ábra jobb oldalán látható radiális vonalrendszer a stripping film és a minta közé jutott levegőbuborék okozta mechanogram. Nagyitás: 20x

Az artefaktok és ezeken belül elsősorban a kemogramok jellegzetessége, hogy főleg az emulziónak a mintával érintkező vékony, felületi rétegében képződnek, szemben a radioaktiv sugárzás hatására létrejövő feketedéssel, amely az emulzió teljes mélységére terjed ki. Ez a mélységi kiterjedésbeli különbség biztositja a két jelenség megkülönböztethetőségének egyik utját a nagy mikroszkópnagyitások /5-600x/ kis mélységélessége révén. Ez a megkülönböztetés akkor

lehetséges, ha az artefakt feketedése nem akkora, hogy minden mást elnyom.

Kisebb nagyitások /20-100x/ esetén is adódik lehetőség a nagyobb felületre kiterjedő és viszonylag kis feketedésü artefaktok és a radioaktiv forrás okozta kép megkülönböztetésére. Az autoradiogram és a mikroszkóp tárgylencséje közötti távolság megnövelésével magának az autoradiogramnak finom szerkezeti részletei elmosódnak, mig az artefaktok összefüggő foltja alig változtatja alakját /4., 5. ábra/. Ez a képéletlenités lehetővé teszi az artefaktmentes részletek kiválasztását az autoradiogramon, majd a kvantativ kiértékelést /4a., b. ábra/



4a. ábra

Éles kép a diffuziós autoradiogramról, amely artefaktot is tartalmaz



4b. ábra

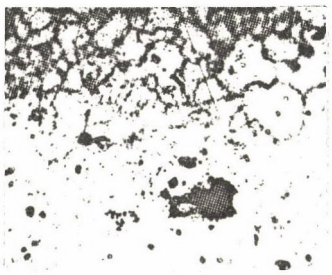
Defókuszálás hatására összefolyik az autoradiogram szerkezeti képe, mig az artefakt élessége alig változik

Nagyitás: 20x

/Elektronikus uton nyert pozitiv kép az autoradiogramról/

Kémiai vagy mechanikai hatás következtében az autoradiogramokon olyan jellegü és feketedésü foltok képződhetnek, amilyeneket a radioaktiv sugárzás csak sokszoros tulexpozició után hoz létre. Ezek a mikroszkóp kardioid kondenzorával megvilágitva, a sötét látótérben, erőteljes fényszóró hatásuk következtében, a fotográfiai alapjelenségtől független fényes foltokként jelennek meg.

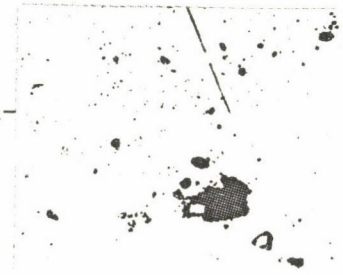
Ugyancsak jól megkülönböztethetők az artefaktok az autoradiogramnak áteső, majd ráeső fényben történő vizsgálatánál is /5a., b. ábra/.



5a. ábra

5.b ábra

W-185 szemcsehatár öndiffuziójának autoradiográfiás képe
Nagyitás: 20x



áteső fényben megvilágitva

ráeső fényben megvilágitva

A két ábra egybevetése lehetőséget nyujt az autoradiogram hibátlan részeinek egyértelmü kiválasztására.

Tekintettel arra, hogy az artefaktok az emulzió előhivása során, de az azt megelőző, nemkivánatos mellékhatások eredményeként jönnek létre, a filmnek az előhivás utáni száritása alatt létrejövő anizotróp deformációk nem okoznak ujabb artefaktokat, de a feketedés eloszlási képének kisebb-nagyobb kiterjedésü geometriai torzulásait válthatják ki. Ezek mértékéről a filmnek a próbatesten kiválasztott referenciapontokkal történő egybevetése alapján kaphatunk felvilágositást.

IRODALOM

1. *R. Baserga, D. Malamud,* Autoradiography Techniques and Applications. New York, Harper and Row 1969
2. *A.W. Rogers,* Techniques of Autoradiography, Amsterdam, Elsevier 1969
3. *J.C. Grosskreutz,* J.Appl.Phys 33 /1962/ 2653
4. *M. Blundall, J. Rotblatt,* Nature 167 /1951/ 645
5. *G. Guidotti, F. Passalacqua,* Experientia, 12 /1956/ 157
6. *C. Chapman-Andresen,* Compt. Rend. Trav. Lab. Carlsberg Ser. Chim., 28 /1953/ 529
7. *W. Sawiczki, Z. Darzynkiewicz,* Folia Histochem. Cytochem. 1 /1963/ 283
8. П. Штудниц, А. Малюнов, Металловед. обраб. Мет., 6 /1955/ 15
9. *W. Braun,* Z. angew. Phys., 7 /1955/ 427
10. Kodak Data Booklet SC-10: Autoradiography /1971/

Érkezett 1973. márc. 31

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 270-274

SUGÁRVÉDŐ HATÁSÚ AET FEHÉRJÉKHEZ VALÓ KÖTŐDÉSÉNEK KVANTITATIV VISZONYAI

Horváth M.

Orvostovábbképző Intézet, Onkoradiológiai Tanszék, Budapest

A ^{14}C-gyel jelzett sugárvédő MEG fehérjék szabad, reaktiv SH csoportjaihoz kötődik, s fiziológiás körülmények közt kevert diszulfidok képződnek. Hosszu inkubációnál, lugos pH-kon s detergensek /pl. urea/ jelenlétében a nem reaktiv SH- és SS-csoport is kicserélődési reakcióba lép.

A kvantitativ analizist megelőzően a kötetlen ^{14}C-MEG-t dializissel vagy gélszüréssel lehet elválasztani a komplextől. A kevert diszulfid kötés stabilis; a fehérje és a ^{14}C-aktivitás papirelektroforézisnél együtt vándorol.

Количественные отношения связи соединения радиопротектора АЭТ с белками
Хорват, М.

Радиопротектор МЭГ, меченный ^{14}C связывается при физиологических условиях со свободными реактивными SH-группами белков, образуя смешанный дисульфид. При длительных инкубационных временах, щелочных значениях pH и присутствии детергентов, как напр. урея, и нереактивные SH- и SS-группы могут взаимодействовать.

Несвязанный МЭГ может быть отделен от комплекса с помощью диализа или фильтрации через гел перед анализом. Смешанная дисульфидная связь по электрофоретическим исследованиям оказалась стабильной, белок и ^{14}C-активность перемещаются вместе под влиянием электрического тока.

Quantitative Analysis of the Bond of Radioprotective AET with Proteins
Horváth, M.

^{14}C-labelled radioprotective MEG is bound by the free, reactive SH groups of proteins, forming mixed disulfides under physiological conditions. On long incubation, at alkaline pH-s and using detergents, such as urea, unreactive SH and SS groups also enter exchange reactions.

Before quantitative analysis, unbound ^{14}C-MEG can be separated from the complex by dialysis or gel filtration. The mixed disulfide bond is stabile; when examined by paper electrophoresis, protein and ^{14}C activity migrate together.

Az AET /S-2-aminoetilizotiouronium/ ismert sugárvédő vegyület és a kén tartalmu, potenciális SH-csoporttal rendelkező vegyületek közé tartozik[4]. Ennek az a lényege, hogy pH 7 fölött, vizes oldatban MEG-é /merkaptoetilguanidin/ alakul. A levegő oxigénjének hatására diszulfid formává, GED-é /guanidoetildiszulfid/ oxidálódik, mely két molekula MEG-ből keletkezik. Mind a MEG, mind a GED fehérjékhez képes kötődni, és velük kevert diszulfid kötést képez:

fehérje - S - S - sugárvédő

A kevert diszulfid kötés, általánosan elfogadott nézet alapján, sugárzás ellen védelmet biztosit[5-7].

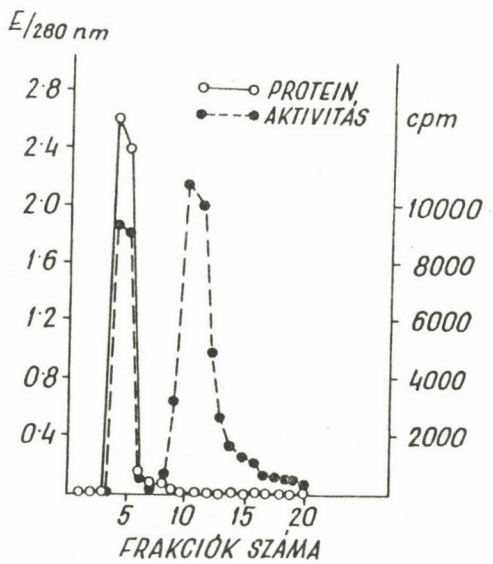
Kisérleteinkben ^{14}C-AET-t használtunk, melynek fajlagos aktivitása általában 0,9 µCi/mg körül volt. Az AET oldásakor ügyelni kell arra, hogy a pH-t 7 fölött tartsuk. Az AET-t ugyanis mint az alapvegyület bromidjának HBr sóját szintetizálják, ezért vizes oldásnál erősen savanyodik. Ha az oldat pH-ja foszfátpufferben pH 6 alá süllyed, sugárvédő hatás szempontjából értéktelen 2 AT /2-aminotiazolin/ képződik[2]. 0,2 molaritásu foszfátpufferben

azonban a NaH_2PO_4,Na_2HPO_4 és Na_3PO_4 arányát ugy tudjuk az AET koncentrációjának megfelelően változtatni, hogy a pH-t 7,5-ön lehet tartani. A frissen oldott AET-vel tehát gyakorlatilag MEG formájában dolgozunk. Az alkalmazott módszer lényegében Dickens és Shapiro eljárásának módositott formája[3].

A ^{14}C-MEG pH 7,5-ön, szobahőmérsékleten /25°C/ történő pár órás /általában 5 órai/ inkubáció alatt, *in vitro* kötődik proteinek SH-csoportjaihoz[9]. Nativ, diszulfid proteinek ilyen enyhe fiziológiás körülmények közepette nem lépnek reakcióba. Kisérleteinkben marha szérumalbumint /Calbiochem, illetve Fluka gyártmányu/, mint diszulfid tipusu modellvegyületet és hemoglobint /melyet oxihemoglobin formájában defibrinált vérből magunk készitettünk/, mint SH-tipusu fehérjét használtunk.Az albumin töredék SH-csoportot /általában 0,5-0,7 mól/ és 17 diszulfidhidat tartalmaz, mig a hemoglobin /Hb/ 2 reaktiv és 2 nem reaktiv /ló-Hb/, illetve 2 reaktiv és 4 nem reaktiv /humán Hb/ SH csoporttal rendelkezik[1].

^{14}C-MEG-el történő inkubálás alatt az albumin szabad SH-csoportja lép reakcióba, diszulfid hidjai nem, mig a Hb-nak reaktiv SH-csoportjai képeznek MEG-el kevert diszulfid kötést. Ennek kvantitativ értéke bizonyos ingadozásokat mutathat, az SH-csoportnak az előállitástól függő kissé változékony reaktivitása és az inkubációs elegy MEG-koncentrációjától való függősége miatt. A MEG ugyanis, mint redukáló hatásu, kis molekuláju tiol vegyület, bizonyos hatást tud kifejteni a proteinek SH-, illetve SS-csoportjaira is /pl. labilizálja a hidrogénkötéseket/, még akkor is, ha nem lép velük stöchiometrikusan reakcióba.

A fehérjével képezett kevert diszulfid komplexet a kötetlenül maradt ^{14}C-MEG-től többnyire pufferrel szemben történő kimeritő dializissel vagy Sephadex G-25 oszlopon történő gélfiltrálással lehet elkülöniteni. Előbbi alkalmasabb módszer sorozatvizsgálatoknál, mert kevésbé munkaigényes, de a kötetlen aktivitás gélfiltrációval is teljesen elválasztható /1. ábra/.



A fehérjével képzett kevert diszulfidnál értékeltük az 1 mól fehérje által megkötött mól MEG tartalmat /M/M/ olymódon, hogy az oldat fehérjetartalmának meghatározása után[10] megmértük a ^{14}C-aktivitásokat Frieseke-Höpfner gázáramlásos készülékben, aluminium tányérká-

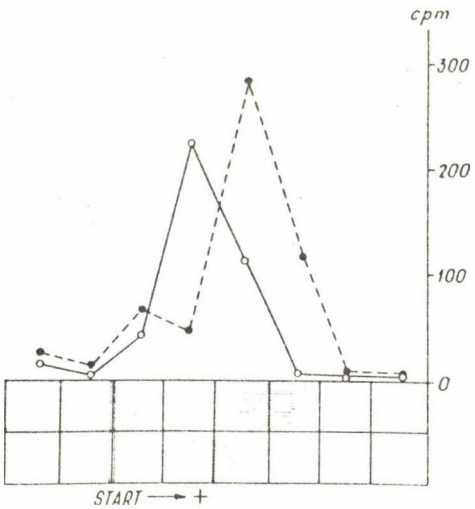
1. ábra

Fehérje-AET komplex és kötetlen AET elválasztása gélszüréssel

kon, 0.1 ml térfogatból. Ezt megelőzően olyan 10-50-szeres higitásokat végeztünk, hogy a mért cpm értékek lehetőleg 100-1000 cpm közé essenek, mert fehérjeoldat esetében lineáris koncentrációfüggőséget ebben a tartományban kaptunk. A cpm leolvasásoknak megfelelő µg MEG értékeket standard görbéről olvastuk le, és a higitással beszorozva kiszámitottuk a µg MEG / mg fehérjeértékeket. Ebből a fehérje és AET molekulasulyának /281/ ismeretében, kiszámitottuk az M/M értékeket, melyek az illető vizsgált fehérje reakcióképes SH-csoportjairól adtak képet.

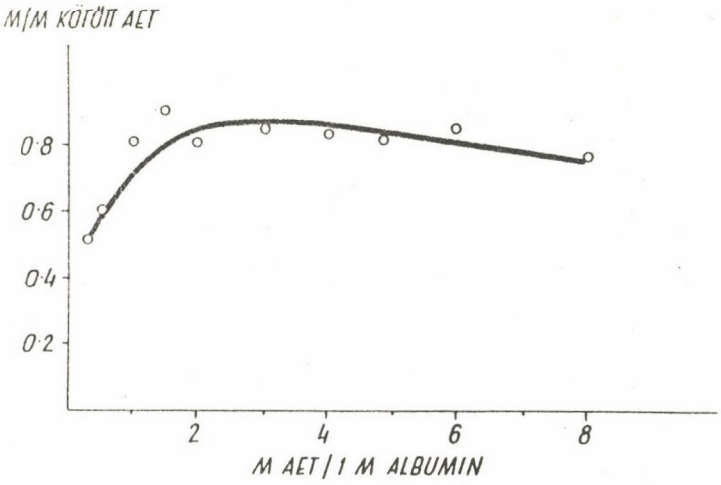
A kevert diszulfid, mely a fehérje és MEG között létrejön, kémiai kötésre épül és nem felületi adszorpció. Ez papirelektroforézises vizsgálattal lehet bizonyitani /2. ábra/. pH 9-es barbiturál pufferben, 300 volt feszültség mellett, 5 órán át elektroforetizálva, a fehérje-MEG komplex homogén anyagként vándorol az elektromos térben, és a papiron mért ^{14}C-aktivitás helye megegyezik a festhető proteinfolt helyével.

Az M/M értékek kiszámitásához, egy fehérjemolekula reakcióképességének és az optimális reagensviszonyoknak tisztázásához a MEG-koncentrációs görbék szolgáltak. Albumin esetében egy maximális M/M érték elérése után, ez enyhén visszahajlott /3. ábra/,



2. ábra

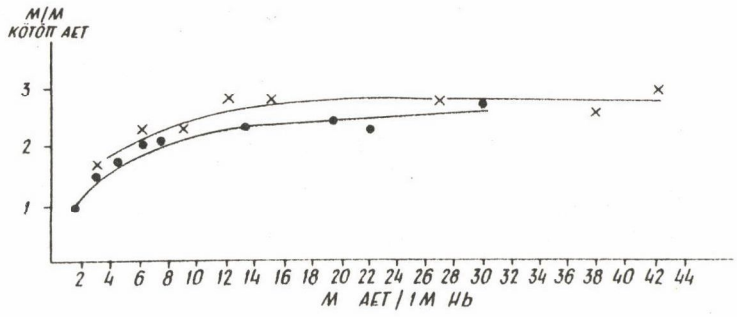
Albumin-AET és Hb-AET komplex papir elektroforogramja a hozzájuk tartozó ^{14}C-aktivitással



3. ábra

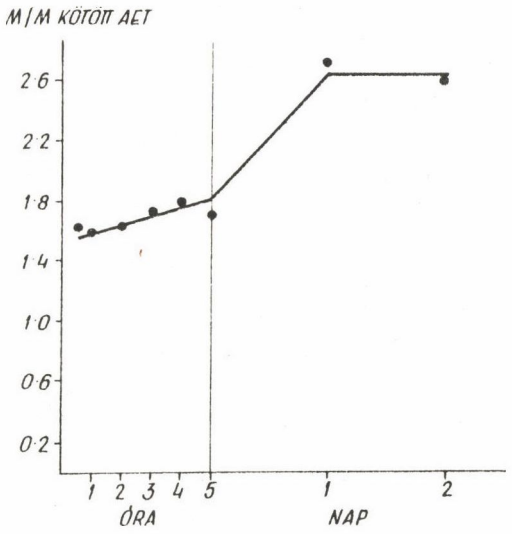
Marha-szérumalbumin AET megkötésének AET-konc. görbéje

mig Hb esetében többnyire határértéket ért el, /4. ábra/ és azt tartotta. A MEG-koncentrációgörbéről leolvasható, mennyi az a MEG felesleg az inkubációs elegyben, melynél optimális megkötést lehet elérni.



4. ábra

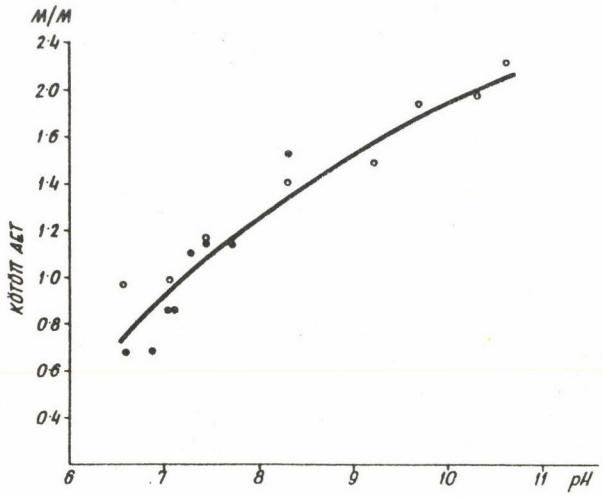
Hb AET-megkötésének AET-konc. görbéje



5. ábra

Hb AET-megkötésének időgörbéje

A különböző speciesü Hb-ok reaktivitása igen változó. Legreaktivabbnak a ló-Hb-t találtuk, a humán Hb-t kevéssé. Az egér, birka és nyul Hb is csökkenő sorban mutat reaktivitást a MEG-el szemben.

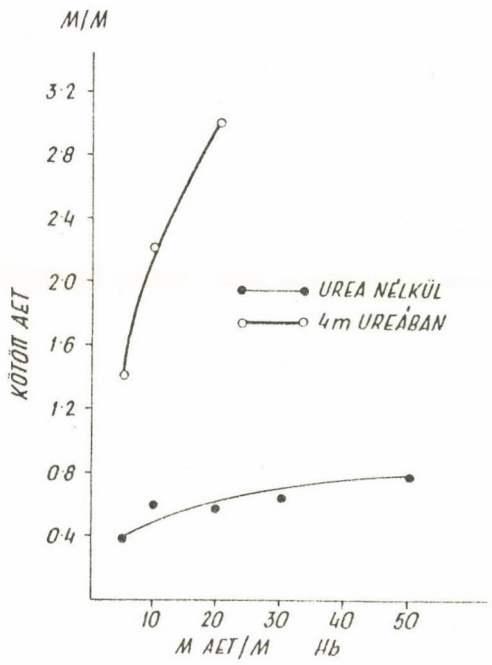


6. ábra

Humán Hb AET-megkötésének pH-függése

A fentiekből látható, hogy a vázolt, a nativ strukturát nem befolyásoló kisérleti körülmények közepette, az albumin töredék SH-csoportjának, a Hb reaktiv SH-csoportjainak arányában köti meg a MEG-t.

A megkötés mértéke, vagyis az M/M számértéke, nem képez éles határt reaktiv és nem reaktiv SH-csoportok között, ezen felül a kisérleti körülmények módositásával befolyásolni is lehet. Ilyen hatásu tényezők pl. a reakció-idő hosszabbitása, több óráról napokra /5. ábra/, a pH növelése a fiziológiásból a lugos tartomány felé /6. ábra/, továbbá a molekula



7. ábra

Hb AET-megkötése urea jelenlétében

α-hélix láncának kitekeredését okozó urea használata /7. ábra/. Mindezen esetekben a nativ fehérjestruktura bizonyos változásokon megy át. Az időgörbéknél lassu reakciók is lezajlanak, mint pl. az albuminnál a Hird által leirt[8] reaktiv 0,4-0,5 mól diszulfid is reakcióba léphet, mig Hb esetében a molekula belseje felé fordult, nem reaktiv SH-csoportok is reagálhatnak. A lugos pH különösen hatásos a diszulfidhidak labilizálásában, mig az urea azt még fokozza is. Hb-nál a tetramer molekula disszociációja következhet be. A négy moláros ureát kedvezőbbnek találtuk az AET-vel való reakcióban; 8 moláros ureában a disszociáció és vele együtt az SH-reaktivitás visszaszorult.

Összegezve eredményeinket, elmondható, hogy ^{14}C-vel jelzett MEG segitségével jól tudtuk követni a fehérjék által megkötött sugárvédő vegyület kvantitativ reakcióviszonyait. A reakcióba nem lépett kötetlen MEG dializissel, illetve gélszüréssel elkülöníthető, mig a kevert diszulfidot képező sugárvédő vegyület avval bizonyitja stabil kémiai kötését, hogy papirelektroforézisnél együtt vándorol a fehérjével. A vizsgált albumin, fiziológiás kisérleti körülmények közepette, töredék SH-csoportjának arányában, a Hb pedig reaktiv SH-csoportjai által köti meg a sugárvédő vegyületet.

IRODALOM

1. *Cecil, R.*, The role of sulfur in proteins. In "The Proteins" ed. by Hans Neurath. 2nd ed. Acad. Press. New York and London. 1963. 379.
2. *Csâgoly, E., Mód, L., Sztanyik L.*, Acta Polon. Pharm. 30 /1973/ 35
3. *Dickens, E.A., Shapiro, B.*, Radiat. Res. 14 /1961/ 308
4. *Doherty, D.G., Burnett, W.T.*, Proc. Soc. Exp. Biol. 89 /1955/ 312
5. *Eldjarn, L., Pihl, A.*, Progress in Radiobiology, 1956 Oliver and Boyd. 249.
6. *Eldjarn, L., Pihl, A.*, 25th Anniversary Publications from the Norwegian Radium Hospital. Oslo. 1958, 253.
7. *Eldjarn, L., Pihl, A.*, J.Biol. Chem. 225 /1957/ 499
8. *Hird, F.J.R.*, Biochem. J. 85 /1962/ 320
9. *Horváth, M., Fóris, G., Csâgoly, E., Sztanyik, L., Dalos, B.*, Int. J. Radiat. Biol., 21 /1972/ 263
10. *Lowry, O.H., Rosebrough, N.I., Farr, A.L., Randall, R.J.*, J. Biol. Chem. 193 /1951/ 265

Érkezett 1973. márc. 9-én.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 275-278

SUGÁRVÉDŐ AET FEHÉRJÉK KÖZTI KEVERT DISZULFID KÖTÉS TIOLOS HASÍTÁSÁNAK REAKCIÓMECHANIZMUSA

Horváth M.
Orvostovábbképző Intézet, Onkoradiológiai Tanszék, Budapest

A fehérje SH- és SS-csoportjai és a sugárvédő ^{14}C-MEG közti kevert diszulfid kötést a kis molekulasulyu tiolvegyületek könnyen hasitják. E hatást Pasteur-pipettába töltött ioncserélő Sephadexon mikrokromatográfiásan lehet követni. Hasadás után a fehérje az oszlopon megkötődik. A felszabadult ^{14}C-aktivitást elválasztjuk és folyadékszcintillációs számlálóval mérhetjük. A hasító tiol-vegyületek koncentráció-, pH- és időgörbéi fehérje-MEG és hemoglobin-MEG kötésben.

Механизм реакции расщепления смешенной дисульфидной связи, образованной между соединением - радиопротекторам АЭТ и белками.
Хорват, М.

Смешанная дисульфидная связь, образованная между SH- и SS-группами белков и радиопротектором C^{14}-МЭГ легко расщепляется тиоловыми соединениями. За влиянием можно следить микрокроматографическим методом. Это производится на ионно-обменный Sephadex раздитом в пастэровские пипетки. После расщепления белок может быть связан на верху столбца, а освобожденная C^{14}-активность смывается и может быть измерена в жидкостном сцинцилляционном счетчике. Концентрационные, pH и временные кривые расщепляющих тиоловых соединений в альумин-МЭГ и гемоглобин-МЭГ связях.

Reaction Mechanism of Thiol Splitting of Mixed Disulfide Bond Formed Between Radioprotective AET and Proteins
Horváth, M.

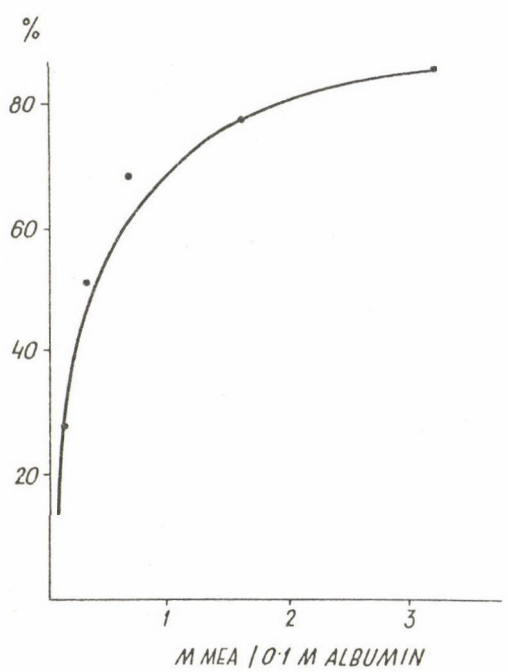
The mixed disulfide bond formed between SH-SS groups of proteins and radio-protective ^{14}C-MEG is easily split by low molecular weight thiol compounds. The effect can be followed by microchromatographic method performed on ion exchange Sephadex columns filled in Pasteur-pipettes. After splitting the protein is bound on the column. The liberated ^{14}C-activity can be eluted and measured by liquid scintillation counter. Concentration, -pH,- and time curves of the splitting thiols on the albumin-MEG and hemoglobin-MEG mixed disulfide bond.

Előző közleményünk adataiból kiderült, hogy a sugárvédő hatásu AET, szabad SH-csoportot tartalmazó MEG formájában való *in vitro* kötődése fehérjékhez azok reaktiv SH-csoportjain át történik fiziológiás pH-n[3,4]. A szérumalbumin általában 0,5-1,0 mól MEG /mól protein /M/M, a hemoglobin /Hb/ kb. 2 M/M arányban köti meg a sugárvédő vegyületet. A kevert diszulfid kötés nem felületi adszorpció, hanem stabil kémiai kötés, amely azonban kis molekuláju tiol vegyületek /cisztein, merkapto-etil-amin, merkapto-etil-guanidin, redukált glutation, stb./ hatására könnyen felszakad. A tiolos hasitás reakciómechanizmusát jelzetlen tiol vegyület alkalmazásával lehet tanulmányozni. Lényegében cserereakcióról van szó: a hasító tiol vegyület a leszakadó ^{14}C-el jelzett MEG helyébe épül be a fehérjére. Ha a hasitást ugyancsak jelzett tiol vegyülettel végezzük, a megkötött aktivitás mennyisége változatlan marad, igy tehát nem tudjuk a reakciómechanizmust tanulmányozni. Ha jelzetlen tiollal dolgozunk, a leszakadó ^{14}C-MEG mennyiségét aktivitásméréssel meg lehet határozni, és igy a reakciómechanizmust követni tudjuk.

A hasitás kvantitativ mérését mikrokromatográfiás eljárással végeztük[5]. Az eljárás lényege, hogy Pasteur-pipettákba 0,5 x 4,0 cm-es oszloptöltetet viszünk ioncserélő Sephadexből. A pipetta alsó szükületébe előzetesen kis nedvesitett vattadugót nyomkodunk, lazán, hogy a Sephadex ne hatoljon át a pipetta szükületén. Ezután az oszlopot a megadott magasságig feltöltjük, albumin-MEG komplex vizsgálata esetén DEAE-Sephadex A-50, Hb-MEG komplexnél CM-Sephadex-szel. Az ioncserélő ekvilibrálását 0,01 moláros pH 6,5-ös foszfát pufferben végezzük. Ha az oszloptöltet tetejére tiol vegyülettel inkubált fehérje-MEG komplex 100-200 µl-ét visszük fel, az ioncserélő a fehérjét megköti, mig a tiol vegyület hatására leszakadó ^{14}C-aktivitás az oszlopról pufferrel lemosható, és az oszlop alján gyüjthető. A leoldott ^{14}C-MEG-t 1 ml-es frakcióban gyüjtöttük, minden 1 ml-hez 10 ml toluol-triton X 100 2:1 arányu keverékét adtuk müanyag fiolában, majd alaposan összeráztuk. Nem emulzió, hanem teljes oldat képződött. A méréseket Beckman DB-G folyadékszcintillációs scalerben végeztük. A toluol 4 g PPO /2,5-difenil-oxazol/ és 0,1 g dimetil-POPOP /1,4-bisz-2 (4-metil-5-feniloxazoil)-benzol/-t tartalmazott literenként. Minden méréshez a hasitás nélküli kontroll minta átmosásából származó frakciókat is hozzámértük. Ez általában az oszlopról hasitás után lemosott összaktivitás 1-3 %-a volt, és spontán hasadásnak tekinthető, ami az ioncserélő gyanta reaktiv csoportjaival való kölcsönhatásból keletkezik. Ezt a kontrollértéket a mért összaktivitásból levontuk.

A vázolt módszerrel a hasitó tiol vegyületek koncentrációs, idő- és pH – hasitásgörbéit tanulmányozni tudtuk.

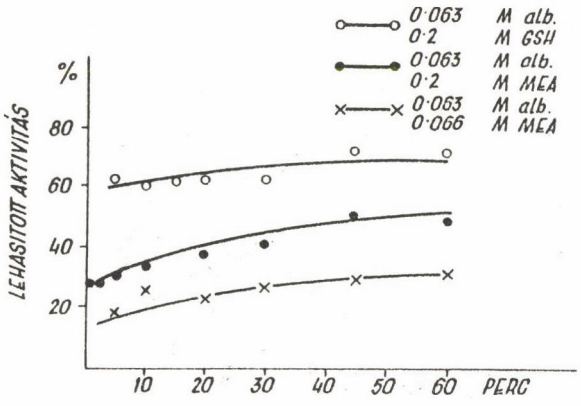
Azt tapasztaltuk, hogy az albumin-MEG kevert diszulfid kötés igen könnyen hasitható, a tiol vegyület csekély feleslegével, már pH 5 körül. A hasitás mértéke tiol koncentrációtól és pH-tól függő, mint az 1. ábrán látható. A hasitást az enyhe hatásu merkapto-etil-amin /MEA/ is el tudja végezni. A hasitás azonban nem teljes, egyensulyi állapot jön létre, illetve a megkötött aktivitásnak mintegy 15-20 %-a nem szakad le, még nagyobb tiolfelesleg mellett sem /1. ábra/. Ugy véljük, ez a része a kevert diszulfid kötésnek az Andersson által leirt[1-2] nem redukálható nem merkaptoalbumin és tiol vegyület közt létrejött kötéstipus.



1. ábra

Albumin AET kevert diszulfid kötés hasitása MEA-val
MEA-konc. görbe

Az albumin-MEG kevert diszulfid kötés hasitásában időgörbe felvétele nem reális. A reakció időbeni lefolyása igen gyors, szinte pillanatok alatt lezajlik, az idő függvényében a görbének gyakorlatilag nincs emelkedése /2. ábra/. A való helyzetet még inkább a röviditett időgörbék függésében lehetett megközeliteni, az első 5 perc alatt mért hasadási értékkel /3. ábra/.

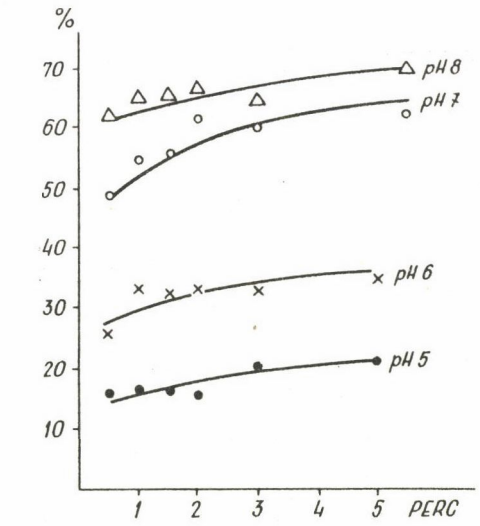


2. ábra

Albumin-AET kötés tiolos hasitásának időgörbéje

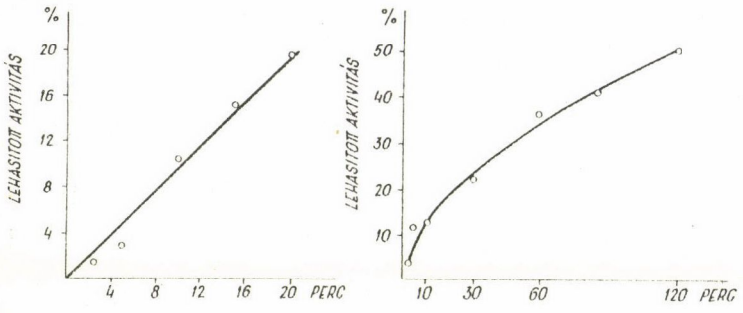
A Hb-MEG közti kevert diszulfidhid sokkal ellenállóbb, nagyobb reagensfölösleg, erélyesebb hasitó tulajdonságokkal rendelkező tiol, magasabb pH szükséges a hasitáshoz, és a reakciónak időbeli lefolyása is van /4. ábra/. A hasitáshoz, MEA helyett redukált glutationt /GSH/, illetve MEG-t használtunk, a pH-t 6,5-7,5-re növeltük, a tiolfölösleg több százszoros volt. Az időgörbe egyenletes és lassu lefutásu, határérték felé közeledik.

Megállapitható, hogy a mikrokromatográfiás eljárással a kevert diszulfidkötésből felszabaduló ^{14}C-aktivitás mérése jól használható a tiolos hasitás reakciómechanizmusának tanulmányozásában.



3. ábra

Albumin-AET kötés MEA-val való hasitásának röviditett időgörbéje



a/ b/

4. ábra

Hb-AET kötés GSH-val való hasitásának időgörbéi

a/ 400-szoros GSH-fölösleg, pH 6,5, szobahőmérséklet

b/ 260-szoros GSH-fölösleg

IRODALOM

1. *Andersson, L.O., Berg, G.*, Biochim. Biophys. Acta. 192 /1969/ 534
2. *Andersson, L.O.*, Biochim. Biophys. Acta. 200 /1970/ 363
3. *Horváth, M. Fóris, G., Cságoly, E., Sztanyik, L. Dalos, B.*, Int. J. Radiat. Biol. 21 /1972/ 263
4. *Horváth M.*, Izotóptechnika, 5 /1973/ 270
5. *Mannervik, B., Sörbo, B.*, Biochem. Pharmacol. 19 /1970/ 2509

Érkezett 1973. márc. 9-én.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 279-283

BESUGÁRZÁS HATÁSA FEHÉRJE ÉS SUGÁRVÉDŐ AET KÖZÖTTI KEVERT DISZULFID KÖTÉSRE

Horváth M.
Orvostovábbképző Intézet, Onkoradiológiai Tanszék, Budapest

Az albumin MEG komplexnél 2-3 Mrad, a hemoglobin-MEG komplexnél 5 Mrad sugárdózis nem csökkenti az oldékonyságot. Utóbbi esetben azonban methemoglobin képződött. A fehérje és a MEG közti kevert diszulfid kötés γ-besugárzásra nem hasad, inkább stabilizálódik. Papirelektroforézissel denaturalizálódás állapitható meg. A MEG az albuminnál védőhatást fejt ki, a hemoglobinnál azonban inkább növeli a sugárérzékenységet.

Изучение влияния облучения на смешенную дисульфидную связь соединения-радиопротектора АЭТ и белков.
Хорват, М.

В случае альбумина-МЭГ доза в 2-3 Мрад, в случае гемоглобина-МЭГ, 5 Мрад не уменьшила растворимости. В последнем случае облучение сопровождалось с образованием метгемоглобина.

Смешанная дисульфидная связь, образованная между белками и МЭГ не расщепляется под влиянием γ-облучения, а скорее стабилизируется. Денатурационные явления изучены электрофоретическими исследованиями на бумаге и по полученным данным оказалось, что МЭГ выявляет свой защитный эффект в случае албумина, но присутствие его у гемоглобина скорее повышает лучевое поражение.

Effect of Irradiation on the Mixed Disulfide Bond Between Proteins and Radioprotective AET
Horváth, M.

In the case of albumin-MEG complex, the irradiation doses were increased to 2-3 Mrad, without causing loss of solubility. With hemoglobin-MEG complex even 5 Mrads could be given. Irradiation was, however, accompanied by methemoglobin formation.

The mixed disulfide bridge formed between proteins and radioprotective MEG was found to be stable; no breakage of the bond was observed. Denaturation of the molecules was stated by paper electrophoresis. In the case of albumin, MEG seems to affect protection, but with Hb the reverse was observed. Denaturation increases with MEG-content and appears at lower doses than with the control sample. Hb seems not to be protected by MEG.

Beszámoltunk már arról, hogy a sugárvédő hatásu AET, szabad SH-csoportot tartalmazó MEG formájában, fiziológiás körülmények közepette /közel neutrális pH-tartományban, szobahőmérsékleten, pár órás *in vitro* inkubálással/, nativ fehérjék SH-csoportján át, kevert diszulfidkötést képez[3,6]. Ez a kevert diszulfidkötés stabil kémiai kötés; papirelektroforézissel vizsgálva, a fehérjével együtt vándorol a megkötött ^{14}C-MEG, viszont érzékenyen reagál a kötés kis molekuláju tiol vegyületekkel való hasitásra[7].

Jelen munkánkban, a fehérjék-MEG komplexének viselkedését tanulmányoztuk, besugárzás hatására. Azt kivántuk megtudni, vajon sugárhatásra felszakad-e a kevert diszulfidkötés, és milyen dózistartományban biztosit a megkötött sugárvédő vegyület védelmet a makromolekulának.

A besugárzást ^{60}Co γ-besugárzó berendezéssel /Noratom, 274 rad/s / végeztük, és a leadott összdózist 5 Mradig növeltük.

Azt tapasztaltuk, hogy a kevert diszulfidhid az igen nagy dózisu besugárzásokat jól türte. A dózisokat addig növeltük, mig oldékonyságcsökkenés

/kicsapódás, gélszerü kocsonyásodás/ nem jelezte a fehérjemolekula denaturációját. Albumin - MEG komplex esetében általában 2-3 Mrados besugárzásnál kezdett gélképződés mutatkozni, hemoglobin /Hb/ - MEG komplexnél 5 Mradnál sem igen jelentkezett csapadék, bár az oldat dózistól függő megbarnulása methemoglobin /metHb/ képződésre utalt.

A besugárzott fehérje-MEG komplexet kétféle módon vizsgáltuk. Besugárzás után ismét megmértük az oldat fehérjetartalmát és aktivitását, a már ismertetett módszerrel[5,6]. Ezután dializáltuk. Két napi, kimeritő dializis után, melyet többszöri puffercserével végeztünk, ismét elvégeztük a fehérje-MEG komplex fehérje tartalmi- és aktivitásvizsgálatát. Azt tapasztaltuk, hogy a kevert diszulfid kötött ^{14}C-MEG tartalma, vagyis az M/M értéke /mól MEG/mól fehérje/ általában nem csökkent, sőt némely esetben még növekedett is. Viszont a be nem sugárzott kontrol fehérje-MEG komplex, melyet a besugárzott mintákkal analóg módon, csupán ismételt dializisnek vetettünk alá, több esetben mutatott spontán aktivitáslehasadást.

Eredményeinket az 1. táblázatban foglaltuk össze. Megállapitható, hogy a fehérje-AET komplex nem mutat hajlandóságot diszulfidhidjának hasadására. Ez ellentétben van Eldjarn és Pihl hipotézisével[4]. A mi esetünkben jelzett MEG nem szabadul fel. Evvel Shapiro és munkacsoportja megállapitásait tudjuk igazolni, akik besugárzás hatására az AET-megkötés növekedését észlelték[3]. Az analógia magyarázata mégsem egyszerü, mert Shapiroék kisérleti körülményei a mienktől eltérőek voltak. Mi ugyanis kötetlen AET-től mentesre dializált komplexet sugároztunk be, és a megnövekedett sugárvédő-vegyület-tartalmat csak ugy tudjuk magyarázni, ha feltételezzük, hogy dializis alatt kis molekuláju, inaktiv fehérjetöredékek távoznak a membránon át.

Az, hogy az esetek többségében, sugárhatásra az M/M érték növekszik, arra vall, hogy a kevert diszulfidkötés stabilizálódik.

Ilyen jelenség megfigyelésével nem állunk egyedül. Rifkind is megfigyelte a Hb molekula stabilizálódását redukált glutation hatására[8]. Nem kétséges, hogy mint molekulatipus, a MEG nem különbözik kémiai viselkedésben a glutationtól.

A kötés stabilizálódása a be nem sugarazott, kontrol fehérje-MEG komplexnél nem következik be, és ismételt dializisnél komoly veszteségek mérhetők az M/M értékében. Andersson irja le[1,2], hogy a diszulfidhidak már pH 8-nál is intenziven tudnak labilizálódni és hasadni. Fel kell tételeznünk, hogy a fehérje-MEG diszulfidkötés a pH 8-at megközelitő pH 7,5-ös dializisnél, ha csekélyebb mértékben is, hidrolizist szenved, és innét van a kontrollnál észlelhető spontán aktivitásveszteség.

A dializises analizis mellett, a besugárzott fehérje-MEG komplexet papirelektroforézises vizsgálatnak is alávetettük, és ezen vizsgálatok eléggé meglepő eredményekhez vezettek.

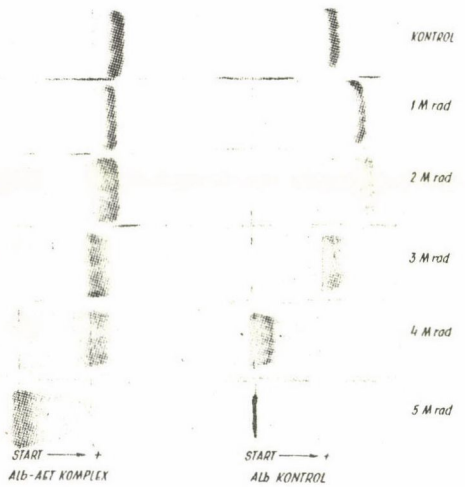
1. táblázat

Besugárzás hatása a fehérje-MEG komplexre

Sorszám	Fehérjekomplex	Dózis rad Mrad	M/M dializis előtt	M/M dializis után
1.	Albumin-MEG 1,64 M/M	1 000		1,04
		10 000		0,97
		50 000		1,00
		100 000		1,00
		500 000		1,02
		1		1,25
1.a.	Albumin-MEG 1,64 M/M	1		1,5
		2		1,55
		3		1,62 kocsonyásodás
		4		2,2 "
		5		2,65 "
		-		1,15 kontr.
1.b.	Albumin-MEG 1,2 M/M	1		1,37
		1.5		1,37
		2		1,55
		2.5		2,13
		3		- kocsonyás, nem vizsgálható
		-		1,2 kontr.
2.	Ló Hb-MEG 2,0 M/M	1		1,4
		2		1,54
		3		1,65
		4		1,72
		5		1,72
		-		1,42 kontr.
2.a.	Ló Hb-MEG 2,8 M/M	1	2,1	2,4
		2	2,4	2,4
		3	2,5	2,04
		4	2,4	2,6
		5	2,6	2,65
		-	2,45	2,2 dializált kontr.
		-	2,6	dializálatlan "
3.	Humán Hb-MEG 0,67 M/M	1 000		0,75
		10 000		0,92
		100 000		0,83
		-		0,76 kontr.
3.a.	Humán Hb-MEG 3,5 M/M	1	3,1	2,7*
		2	3,7	2,75
		3	3,1	2,7
		4	3,05	2,3
		5	3,2	2,1
		-	2,55	1,4 kontr.

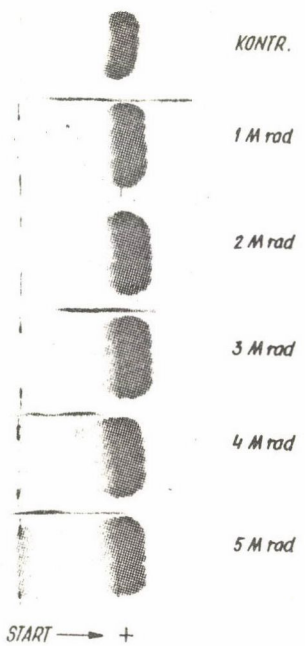
* Sulyos denaturációs tünetek

Az albumin-MEG komplex esetében az látható /1. ábra/, hogy a besugárzás okozta denaturációs jelenségek a kontrol mintához képest nagyobb dózisoknál és csekélyebb mértékben jelentkeztek. A denaturációs jelenségek a papirelektroforézis törvényei szerint a normál vándorlási sebességtől eltérő, a katód felé visszahuzódó, elmosódott foltban jelentkeznek. A denaturált, tehát feltört hidrogénkötésü, nativ konfigurációjától megfosztott fehérjemolekula erősebben



1. ábra

^{60}Co-γ-besugárzott albumin-AET (MEG) komplex papir-elektroforogramja



2. ábra

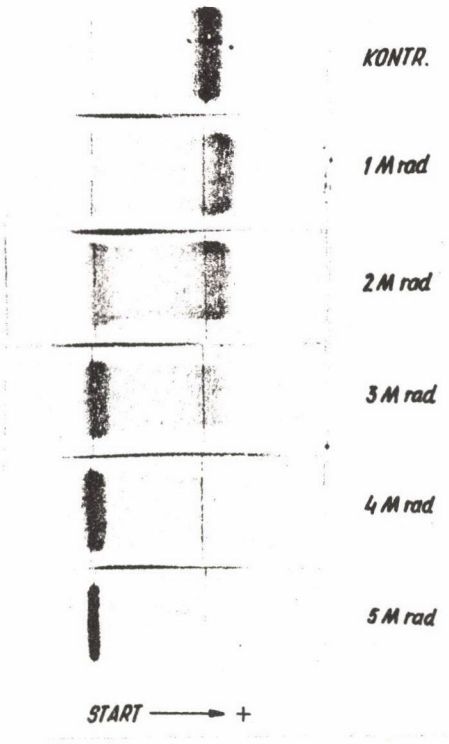
^{60}Co-γ-besugárzott kontroll Hb elektroforogramja

adszorbeálódik a hordozó anyag, jelen esetben a cellulóz rostjaihoz, innét ered az elmosódott, visszahuzódó, fukszinnal festődő folt. Különösen drasztikus denaturációt már aggregátumképződés is kisér, az ilyen fehérje a startvonalon marad, nem vándorol.

A mi esetünkben ez a jelenség is látható. A MEG-el reagált albumin elektroforetikus vizsgálata azt mutatja, hogy a denaturációs jelenségek enyhébbek, mint a kontrollmintánál, és csak nagyobb dózisnál jelentkeznek. Arra lehet tehát következtetni, hogy a MEG az albuminmolekulát a sugárhatás okozta denaturációtól bizonyos mértékig védeni képes.

Hb esetében a jelenség másképpen zajlik le. Hb kontroll besugárzása esetében denaturációs jelenséget, a bemutatott ábra szerint, nem tapasztaltunk /2. ábra/; még 5 Mradnál is csak minimális a cellulózhoz adszorbeálódó, elhuzódó folt. Evvel szemben, a MEG-el kapcsolódott Hb besugárzásánál már 1 Mrad dózisnál észlelhetők denaturációs tünetek, és ezek 5 Mrad-ig teljessé válnak. Még az is megállapitható volt más kisérletekből, hogy növekvő MEG-tartalom a hatás sulyosságát fokozta. A bemutatott 3. ábrán ló-Hb, 2 M/M MEG tartalmu papirelektroforogramját közöljük.

Eredményeink alapján megállapitható, hogy a Hb reaktiv SH-csoportjainak, a sugárvédő hatásunak ismert MEG-el való reagáltatása nem jelent előnyös védelmet a molekula számára. Ugy tünik, hogy a Hb speciális viselkedést tanusit a kevert diszulfidkötés reakciómechanizmusában. Ismét csak Rifkindra hivatkozunk[8], aki a Hb-glutation reakcióban hasonló eredményre jutott. Szerinte is megváltozik



a Hb funkcionális viselkedése, és fokozódik a denaturáció mértéke. Mi sugárvédelmi vonatkozásban azt találtuk, hogy a Hb-MEG komplex sugárérzékenyebb viselkedést tanusit, mint az intakt SH-csoportokkal rendelkező Hb.

3. ábra

^{60}Co γ-besugárzott Hb-AET(MEG) komplex elektroforogramja

IRODALOM

1. *Andersson, L.O., Berg, G.*, Biochim. Biophys. Acta. 192 /1969/ 534
2. *Andersson, L.O.*, Biochim. Biophys. Acta. 200 /1970/ 363
3. *Dickens, E.A., Shapiro, B.*, Radiat. Res. 14 /1961/ 308
4. *Eldjarn, L., Pihl, A.*, Progress in Radiobiology. Oliver and Boyd, 1956, 249
5. *Horváth, M., Fóris, G., Cságoly, E., Sztanyik, L., Dalos, B.*, Int. J. Radiat. Biol. 21 /1972/ 263
6. *Horváth M.*, Izotóptechnika. 17 /1973/ 269
7. *Horváth M.*, Izotóptechnika. 17 /1973/ 274
8. *Rifkind, J.M.*, Biochim. Biophys. Acta. 273 /1972/ 30

Érkezett 1973. márc. 9-én.

HIREK

A KGST Állandó Atomenergia Bizottság Magyar Kormánybizottsága a Szegedi Orvostudományi Egyetem I. sz. Belklinikájával és az MTA Izotóp Intézetével karöltve, május 14-18 között, Szegeden, szimpóziumot rendezett az orvosi diagnosztikában és terápiában alkalmazott radioaktiv gyógyszerek előállitásáról és felhasználásáról. A mintegy 80 külföldi és hazai részvevő 75 előadást hallgatott meg. A szimpóziumon elhangzott magyar előadások várhatóan lapunk julius-augusztusi kettős számában jelennek meg. A szimpózium programja és egyes előadásai /orosz nyelven/ korlátozott számban térités nélkül kaphatók a MTA Izotóp Intézetének Tájékoztatási Csoportjánál /1525 Budapest 114, Pf.77; Telefon: 166-547/154.m/

IZOTÓPOK A TUDOMÁNYBAN

Az Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézetben folyó sugárvédelmi, nukleáris orvostudományi, dozimetriai és sugárbiológiai munkáról számolnak be vezető munkatársak a Magyar Hirlap március 2-5-i számának Tudomány cimü rovatában.

IZOTÓPOK AZ ORVOSTUDOMÁNYBAN

A Szegedi Orvostudományi Egyetem I.sz. Belklinikáján tavaly ősszel helyezték üzembe az uj gamma-kamerát, amellyel különféle szervek térképezhetők fel. A szerv a sokcsatornás analizátor képernyőjén láthatóan is megjelenik.
Délmagyarország, április 15.

IZOTÓPOK ÉS SUGÁRZÁSOK AZ IPARBAN

A siófoki Kőolajvezeték Vállalatnál dolgozó radiológuscsoport munkájáról, a Barátság II kőolajvezeték épitése során végzett izotópos varratvizsgálatról irt a Somogyi Néplap március 29-én.

A Gagarin Hőerőmüben a szénbunkernél és a pernyeeltávolitó rendszernél használtak eddig izotópos müszert, a tartályok teltségének jelzésére. A kedvező tapasztalatok alapján ujabb izotópos müszereket épitenek be a szén hamutartalmának folyamatos mérésére.
Népujság /Heves/ március 15.

A Bányászati Kutató Intézet TÁK-3 elnevezéssel hordozható, kábeles távvezérlésü γ-defektoszkópot dolgozott ki. Az öntvények és hegesztési varratok vizsgálatára készitett készülék iridium-192 izotóppal müködik. Sulya 38,2 kp.
Népszava, április 8.

A nagyteljesitményü besugárzó berendezésekről közöl népszerü cikket a Technische Rundschau április 3-i száma.

A svájci Sulzer AG Münchem közelében 110 000 Ci-s besugárzó berendezést állit fel, amellyel napi 30 m^3 deritőiszapot lehet sterilezni és igy a mezőgazdaság számára felhasználhatóvá tenni.
Isotopenpraxis, március

Két japán kutató vaniliát és heliotropint állitott elő izoeugenol γ-, illetve izoszafron elektronbesugárzással előidézett oxidációja révén. Ezzel az élelmiszeripar és a kozmetikai ipar számára szükséges anyagok közel 100%-os hozammal, jó minőségben és a szokásos eljárásnál olcsóbban állithatók elő. Az eljárásra amerikai szabadalmat kaptak.
Isotopenpraxis, március

NUKLEÁRIS ENERGETIKA

A Lenin atomjégtörőt anyakikötőjében, Murmanszkban, két uj reaktorral szerelik fel.
Kerntechnik, március

Megkezdődik a második bolgár atomerőmü épitkezése Kozlodujban. Ez az erőmü is két novovoronyezsi tipusu reaktorból és négy turbogenerátorból áll majd, akárcsak az első, ugyanott épülő. Az első 1974-75-ben, a második erőmü 1980-ban kezdi meg müködését.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, április

VEGYES HIREK

1970-ben az Egyesült Államokban 6, Franciaországban 4,5, az NSzK-ban 4, Angliában 3,5, Olaszországban több, mint 1, Japánban 1 dollárt forditottak lakosonként az atomenergia békés alkalmazására.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, április

Az Oak Ridge National Laboratory által kiadott Isotopes and Radiation Technology cimü negyedévi folyóirat, pénzügyi nehézségek miatt megszünt.
Isotopenpraxis, március

Lengyelországban jó eredménnyel használják a hóréteg vizegyenértékének meghatározására a radioaktiv kobalt-60-at tartalmazó müszert. Ha a sugárforrást a hóréteg alatt helyezik el, s megmérik a sugárzás erősségének a hóréteg által okozott gyengülését, ebből a vizegyenérték egyszerüen kiszámitható. A müszer szcintillációs detektorát 2,8 m magasságban helyezik el a hóréteg felett. Jelenleg a lengyel Tátrában végeznek ilyen méréseket. A Szovjetunóban a hóréteg vizegyenértékét olyan módszerrel mérik, amely a felső talajrétegben keletkező természetes γ-sugárzás mérésén alapul. Megmérik a talajból származó sugárintenzitást a hóréteg alatt és felett. Ha repülőgépről végzik a második mérést, akkora, hóval boritott területnek a vizegyenértéki viszonyairól kapnak adatokat, amelynek szélessége kb. 300 km, hossza a repülőgép által megtett ut hossza.
Müszaki Élet, április 27.

Francia kutatók Gabon keleti részében 100 millió éves atomreaktor nyomára bukkantak. Az innen származó uránércről megállapitották, hogy az atomreaktorokban képződő hasadványokhoz nagyon hasonló összetételü. Elméleti megfontolások és számitások alapján arra a következtetésre jutottak, hogy az uránérc természetes felhalmozódása következtében egy kb. 1 m átmérőjü, mintegy 10 kW teljesitményü atomreaktor jött létre, mely kb. 30 évig müködött, a mai könnyüvizes reaktorokhoz hasonló módon. A továbbiakban e reaktor biológiai és geológiai hatásának nyomait tanulmányozzák.
Daily News, április 28.

A Budapesti Müszaki Egyetem atomreaktora fontos kutatási és oktatási eszköz. A tanszéken folyó laboratóriumi gyakorlatokon kivül különleges reaktortechnikai tanfolyamokat is rendeznek egyetemi hallgatók részére, s diplomamunkák is készülnek itt. Az 1971/72. tanév második felétől számitott egy év alatt 1085 hallgató vette igénybe a reaktort. Az ott dolgozó szakembereknek egyik legfontosabb jövő feladata a paksi atomerőmü szakemberigényének megállapitása és kiképzési programjának összeállitása. 1974 februárjától kétéves üzemmérnöki tanfolyam meginditását tervezik.
Magyar Nemzet, április 22.

A Rádió "Csucsforgalom" rovata radioaktiv kripton-85 gázzal müködő világitó jelzőlámpákról adott hirt április 24-én. Az átlátszó falu tartályokba zárt gáz világitásra készteti a fal foszforbevonatát, s az ilyen tartályokból összeállitott jelzőlámpa éjjel 165 méterre is tisztán látható.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

IV.

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 6. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE



Közöljük t. olvasóinkkal, hogy az IZOTÓPTECHNIKA 7. és 8. számát kettős számként f.év augusztusában jelentetjük meg.

A szerkesztőség

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 6. SZÁM

BUDAPEST 1973. JÚNIUS

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Roder Magda, a kémiai tudományok kandidátusa
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.49

Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora, Cserép György, Horváth Zsuzsanna, Wojnárovits László, Osvay Margit,
MTA Izotóp Intézet, 1525 Budapest 114, Pf.77

Tárczy Károly,
Villamos Berendezés és Készülék Müvek, 1117 Budapest XI. Budafoki ut 183.

Horváth Zoltán, az állatorvostudományok kandidátusa; Kardos Zsuzsanna,
Állatorvostudományi Egyetem Belgyógyászati Tanszék és Klinika, 1078 Budapest, Landler J. u.2.

Hernádi Ferenc,
Debreceni Orvostudományi Egyetem Gyógyszertani Intézete, 4012 Debrecen

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest

F.v. Nagy Károly
Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7583

1973. 6. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240.-Ft
Példányszám: 250

Egyes szám ára: 20.-Ft

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

T A R T A L O M

Ciklohexán-hexametil-benzol elegy radiolozise..... 291
Roder M.

Радиолиз смеси циклогексана и гексаметил-бензола

Radiolysis of Cyclohexan-Hexamethyl-Benzene Mixtures

A gyürüs szerkezet hatása a szénhidrogének radiolizisére..... 297
Földiák G., Cserép Gy., Horváth Zs., Wojnárovits L.

Влияние циклческой структуры на радиолиз углеводородов

Effect of Cyclic Configuration on the Radiolysis of Hydrocarbons

Sugárrezisztens félvezető detektor előállitása és γ-dózisintenzitások mérésére történő alkalmazása..... 307
Osvay M., Tárczy K.

Использование радиостойких полупроводниковых детекторов для измерения мощных доз излучения

Use of Radioresistant Solid State Detectors for the Measurement of High Radiation Doses

A lud vértérfogatának mérése radioizotópos módszerrel..... 328
Horváth Z., Kardos Zs.

Определение обьема крови гусей методом меченых атомов

Determination of the Blood Volume of Geese by Means of Radio-isotopes

A cisztein sejtanyagcserére kifejtett hatásainak szerepe a sugárrezisztencia fokozódásában
I. E.coli sejtekben kifejtett hatás.....336
Hernádi F.

Влияние цистеина на обмен веществ клеток и роль этого влияния в повышении радиационной стойкости
I. Влияние на клетки E.coli

The Role of the Metabolic Effects of Cysteine on the Enhancement of Cellular Radioresistance

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 291-296

CIKLOHEXÁN-HEXAMETIL-BENZOL ELEGY RADIOLIZISE*

Roder M.
MTA Központi Fizikai Kutató Intézet, Budapest

Ciklohexán besugárzáskor a hexametil-benzol főként pozitiv töltésátadás utján véd.

Радиолиз смеси циклогексана и гексаметил-бензола
Родер, М.

При облучении циклогексана, защитное действие гексаметил-бензола вызывается, главным образом, передачей положительных зарядов

Radiolysis of Cyclohexan - Hexamethyl-Benzene Mixtures
Roder, M.

The protecting effect of hexamethyl-benzene at the irradiation of cyclohexan is caused mainly by transmitting positively charged particles.

A telitett és aromás szénhidrogén-elegyek sugárérzékenységének csökkenése a két komponens között fizikai /gerjesztési energia- és töltésátadás/ és kémiai /gyökbefogás/ kölcsönhatásnak tulajdonitható[1]. Bár mindkét tipusu kölcsönhatás természetét - különösen ciklohexán-benzol rendszerekben - kiterjedten tanulmányozták, ezek viszonylagos mértékének meghatározása még megoldatlan probléma. Jelen kisérleteink célja az volt, hogy a ciklohexán-hexametil-benzol elegyek radiolizisénél meghatározzuk ezen kölcsönhatások viszonylagos nagyságát. Egy korábbi vizsgálatunkban megállapitottuk, hogy a többi aromás szénhidrogéntől eltérően a hexametil-benzol /HMB/ radiolizisekor az aromás gyürühöz történő H-atom addició nem lényeges folyamat[2]. Igy, ha a HMB védőhatást fejt ki a ciklohexán bomlására, akkor ez nem tulajdonitható kémiai kölcsönhatásnak. Ebben az esetben a legvalószinübb az, hogy a védőhatás valamilyen fizikai kölcsönhatás eredménye. A vizsgálat folyadék állapotu elegyek

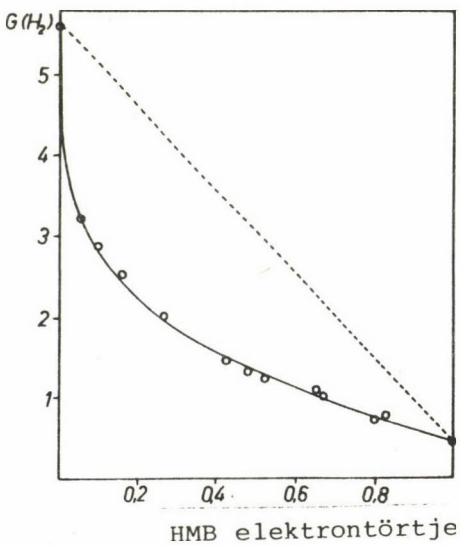
*A "Szénhidrogénreakciók mechanizmusa" c. szimpóziumon elhangzott előadás /Siófok, 1973. junius 5-7/.

főbb radiolitikus termék hozamának meghatározására, valamint ezeknek a különböző scavengerek jelenlétében végbemenő változásának megállapitására terjedt ki.

A minták tisztitása és légtelenitése a sugárkémiában szokásos módon történt. A besugárzásokat ^{60}Co γ-sugárzással végeztük. A gáztermékek mennyiségét frakciónként vákuumrendszerben határoztuk meg. Az egyes gázfrakciók, valamint a folyadék állapotu radiolizis termékek analizisét gázkromatográffal végeztük.

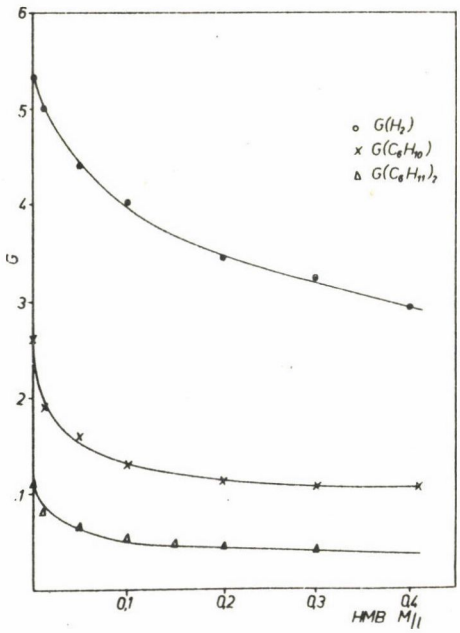
Az 1. ábra a ciklohexán-HMB elegy 170°C-on történő radiolizisekor keletkezett hidrogénhozamokat tünteti fel a HMB elektrontörtjének függvényében. Az ábrán feltüntetett szaggatott vonal azon $G/H_2/$ értékeknek felelne meg, amelyeket akkor nyernénk, ha az elegy komponensei egymás bomlását nem befolyásolnák. Az ábrából látható, hogy az észlelt H_2-hozamok az egyes komponensek elektrontörtjéből számitott értékekkel nem azonosak. Kis HMB koncentrációknál a $G/H_2/$ érték lényegesen csökken, nagyobb koncentrációknál a hozamcsökkenés kisebb.

A 2. ábra a 70°C-on besugárzott ciklohexán-HMB elegyek H_2-hozama mellett a fő folyadék radiolizis termékek, a ciklohexén és diciklohexil hozamok változását is feltünteti a HMB koncentráció függvényében. A görbék lefutása hasonlit a ciklohexán-benzol elegyeknél nyert megfelelő görbékhez[3].



1. ábra

170°C-on besugárzott ciklohexán-hexametil-benzol elegyekben a $G/H_2/$ értékek változása a hexametil-benzol elektrontörtjének függvényében



2. ábra

$G/H_2/$, $G/C_6H_{10}/$ és $G/C_{12}H_{22}/$ értékek változása a hexametil-benzol koncentrációtól 70°C-on történő besugárzáskor

A fenti ábrákból a HMB-nak a ciklohexán bomlására kifejtett védőhatására lehet következtetni. Minthogy a HMB radiolizisekor az aromás gyürühöz történő H-atom addició nem megy végbe, az észlelt védőhatásban a kémiai kölcsönhatás nem játszhat lényeges szerepet. Az ismert ionizációs potenciálok /ciklohexán=9,88 eV[4], HMB 7,85 eV[5]/és az alsó elektrongerjesztési szintek /ciklohexán~7 eV[6], HMB~4 eV[7] / olyanok, amelyek lehetővé teszik, hogy a HMB a ciklohexán bomlására töltés- és elektrongerjesztési energia átadással védőhatást fejtsen ki.

Ezen fenti fizikai kölcsönhatási folyamatok viszonylagos valószinüségének meghatározása céljából a vizsgált ciklohexán-HMB elegyekben különböző elektron- és pozitiv töltés scavengereket alkalmaztunk. Ismeretes, hogy szénhidrogénekben az N_2O igen hatásos elektron scavenger, mely igen nagy valószinüséggel fogja be a szénhidrogének radiolizisekor keletkezett elektront

$$C_6H_{12} \rightsquigarrow C_6H_{12} + e^-$$

$$N_2O + e^- \longrightarrow N_2 + O^-$$

Ezen reakció eredményeként egyrészt N_2 fejlődik, másrészt a szénhidrogén ikerrekombinációját követő H_2-fejlődés lecsökken. Ha a HMB a ciklohexán-HMB elegyben elektronbefogás révén révén fejt ki védőhatást, akkor a HMB és N_2O között fellépő elektron-versengés miatt a $G/N_2/$-nek le kell csökkennie. Az I. táblázat a $G/N_2/$ és $G/H_2/$ változását mutatja ciklohexán-0,01 M N_2O oldatokban, a HMB koncentráció függvényében. HMB jelenléte a $G/H_2/$ értékeket lecsökkenti, azonban a $G/N_2/$ értéke változatlan marad még akkor is, ha a HMB koncentráció negyvenszerese a N_2O-nak. Ez azt mutatja, hogy kis HMB koncentrációknál a HMB védőhatása a ciklohexán bomlására nem elektronbefogás utján érvényesül.

I. táblázat

$G/N_2/$ és $G/H_2/$ változása a hexametil-benzol koncentrációtól ciklohexán-hexametil-benzol-0,01 M dinitrogénoxid elegynél

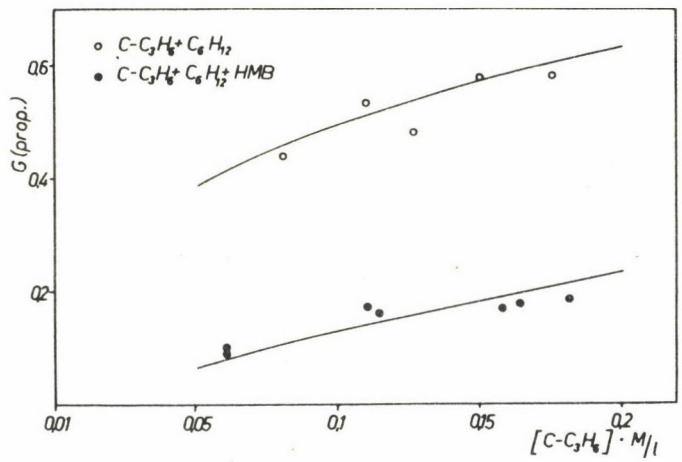
HMB, M	$G/N_2/$	$G/H_2/$
0	1,73	4,18
0,1	1,78	3,85
0,2	1,70	3,40
0,3	1,76	3,18
0,4	1,82	3,05

Thomas[8] impulzus-radiolizis vizsgálatok alapján arra következtetett, hogy ciklohexánban az aromások pozitiv töltés scavengerként hatnak. Stone[9] ugy találta, hogy ciklohexánban a $G/H_2/$ értékek csökkenése benzol hatására részben kation scavengeléssel, részben H-atom addicióval magyarázható.

Megvizsgáltuk, hogy a HMB jelenléte hogyan befolyásolja a ciklohexán-ciklopropán oldat besugárzásakor képződött propán hozamát. E vizsgálat célja a HMB-nak a pozitiv ion reakcióra való hatásának meghatározása volt. Ugyanis a ciklohexán-ciklopropán oldatban besugárzás hatására a propán a ciklohexán kation reakciója során képződik[10].

$$c\text{-}C_6H_{12}^{+} + c\text{-}C_3H_6 \longrightarrow c\text{-}C_6H_{10}^{+} + C_3H_8$$

A 3. ábra a $G/C_3H_8/$ értékeket tünteti fel ciklohexán-ciklopropán és ciklohexán-ciklopropán-0,1 M HMB elegyekben a ciklopropán-koncentráció függvényében. A propánhozam mindkét esetben növekszik a ciklopropán-koncentráció $[CP]$ növekedésével, azonban HMB jelenlétében a $G/C_3H_8/$ értékek lényegesen kisebbek. Ez azt mutatja, hogy a HMB verseng a ciklopropánnal a ciklohexán kationért.



3. ábra

G/propán/ változása a ciklopropán koncentrációtól ciklohexán-ciklopropán és ciklohexán-ciklopropán-0,1 M hexametil-benzol elegyeknél

A ciklopropán-ciklohexán oldatoknál nyert eredmények leirhatók az ion- és elektron scavengelésre vonatkozó Warman, Asmus, Schuler-féle egyenlettel[11]

$$G/\text{propán}/ = 0{,}66 \left[G_{fi} + G_{gi} \frac{\sqrt{\alpha_1 [CP]}}{1+\sqrt{\alpha_1 [CP]}} \right] \qquad /1/$$

ahol G_{fi} a szabad ionhozam, G_{gi} az ikerrekombinációs ionhozam, α_1 az ikerrekombináció és a ciklopropánnal történő pozitiv töltés scavengelés viszonylagos sebességének a mértéke. A 0,66 szorzó tekintetbe veszi, hogy a ciklopropán által scavengelt pozitiv ionnak csak a 66%-a eredményez propánt. A görbét $G_{fi} = 0{,}13$, $G_{gi} = 5$, $\alpha_1 = 0{,}2$ értékekkel számitottuk[12].

A ciklohexán-ciklopropán-HMB oldatoknál kapott eredmények a két ion scavenger közötti versengést figyelembe vevő egyenlettel irhatók le

$$G/\text{propán}/ = 0{,}66 \left[G_{fi} + G_{gi} \frac{\sqrt{\alpha_1 [CP] + \alpha_2 [HMB]}}{1+\sqrt{\alpha_1 [CP] + \alpha_2 [HMB]}} \right] \frac{\alpha_1 [CP]}{\alpha_1 [CP] + \alpha_2 [HMB]} \qquad /2/$$

ahol α_2 a HMB reaktivitásának mértéke. A görbe számitásánál az állandók értéke az /1/ egyenletnél megadottakkal megegyezik, α_2-re a kisérleti adatok illesztéséből 1.4-et kaptunk. Igy a HMB kb. hétszer hatásosabb pozitiv töltés scavengernek mutatkozott mint a ciklopropán.

Ciklohexán-HMB oldatban a HMB által történt pozitiv ion scavengelés mértékét a Warman-féle egyenlet alapján a fenti α_2 érték felhasználásával számitottuk ki.

$$G/\text{scavengelt ion}/ = 0{,}13 + 5 \frac{\sqrt{1{,}4 [HMB]}}{1+\sqrt{1{,}4 [HMB]}}$$

A II. táblázatban az igy kiszámitott scavengelt pozitiv ionhozamok értékét összehasonlitottuk a HMB védőhatása következtében tapasztalt H_2-hozam csökkenéssel /$\Delta G/H_2$//. A tiszta ciklohexánra vonatkozó H_2-hozam értékének a laboratóriumunkban kapott kezdeti $G/H_2/ = 5{,}6$-ot vettük.

II. táblázat

G/scavengelt ion/ és a H_2-hozam csökkenés /$\Delta G/H_2$// változása a hexametil-benzol koncentrációtól ciklohexán-hexametil-benzol elegyeknél

HMB, M	G/scavengelt ion/	$\Delta G/H_2$/
0,01	0,66	0,62
0,05	1,18	1,20
0,1	1,50	1,52
0,2	1,85	2,15
0,3	2,10	2,37
0,4	2,27	2,65

Az összehasonlitás azt mutatja, hogy a vizsgált HMB-koncentráció intervallumban a G/H_2 csökkenés nagymértékben a HMB pozitiv ion scavengelő hatásának tulajdonitható. Valószinü, hogy a számitott scavengelt ionhozam és a G/H_2 csökkenés közötti különbség a közvetlenül gerjesztett ciklohexán-molekuláktól a HMB-ra történő gerjesztési energiaátadás mértékét adja.

Vizsgálataink alapján kimutattuk, hogy a HMB a ciklohexán radiolitikus bomlására védőhatást fejt ki. Ennek nagysága közel áll a benzolnak a ciklohexán bomlására kifejtett hatásához. Kis HMB koncentrációju elegyekben a védőhatás nagymértékben a ciklohexán kationtól a HMB-molekulára történő pozitiv töltésátadásnak tulajdonitható.

IRODALOM

1. *Kroh J.*, Rad.Res.Rev. 1, 111 /1969/
2. *Roder M.*, Acta Chim.Hung. 73, 443 /1972/
3. *Stone J.A.*, *Dyne P.J.*, Rad.Res. 3, 353 /1963/
4. *Watenable K.*, J.Chem.Phys. 26, 542 /1957/
5. Вилешев Ф.И., Ж. Физ.Хим. 35, 2010 /1961/
6. *Holroyd R.A.*, Fundamental Processes in Rad.Res. 1968. p.448
7. Виноградов И.Л., Алещин Е.В., Додонова Н.Я., Оптика и спектроскопия 29, 477 /1970/
8. *Thomas J.K.*, *Mani I.*, J.Chem.Phys. 51, 1834 /1969/
9. *Kennedy M.G.*, *Stone J.A.*, Can.J.Chem. 51, 149 /1973/
10. *Ausloos P.*, *Scala A.A.*, *Lias S.G.*, J.Am.Chem.Soc. 89, 3677 /1967/
11. *Warman J.M.*, *Asmus K.D.*, *Schuler R.H.*, J.Phys.Chem. 73, 931 /1969/
12. *Warman J.M. közlése*

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /297-306

A GYÜRŰS SZERKEZET HATÁSA A SZÉNHIDROGÉNEK RADIOLIZISÉRE*

Földiák G., Cserép Gy., Horváth Zs., Wojnárovits L.
Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete, Budapest

Az alifás és ciklusos szénhidrogének eltérő termékhozamai a molekulák szerkezeti felépítésével értelmezhetők

Влияние циклической структуры на радиолиз углеводородов
Фельдиак, Г., Череп, Д., Хорват, Ж., Войнарович, Л.

Разности между выходами продуктов, полученных из алифатических и циклических углеводородов, объясняются различием в структуре их молекул.

Effect of Cyclic Configuration on the Radiolysis of Hydrocarbons
Földiák, G., Cserép, Gy., Horváth, Zs., Wojnárovits, L.

Differences between the yields obtained with aliphatic and cyclic hydrocarbons are interpreted by the configuration of their molecules.

A szénhidrogének sugárhatáskémiai bomlását főként szobahőmérsékleten vizsgálták. Az irodalmi adatok szerint a kutatók jelentős része az alifás alkánok és alkének radiolizisét tanulmányozta, a ciklusos vegyületekkel kapcsolatos vizsgálatok pedig szinte kizárólag a C_5-C_6 szénhidrogénekre korlátozódtak. Mivel - ismeretes módon - az 5 és 6 szénatomos cikloalkánok és cikloalkének termodinamikai, stb. adatai közelitik meg leginkább a megfelelő alifás szénhidrogénekét, nem meglepő, hogy a gyürüs szerkezet hatására alig találhatók utalások az irodalomban.

Kisérleteinket az Intézet 80 000 Ci névleges aktivitásu ^{60}Co sugárforrásával végeztük, általában 1-2 Mrad/h dózisteljesitménnyel, illetve 0-10 Mrad dózissal. A besugárzásokra folyadékállapotban levegőmentesitett ampullákban került sor.

A vizsgált cíklusos alkánok közül a cikloheptánnak zérus besugárzási dózisra extrapolált hozamértékeit az *I. táblázatban*, nagyszámu, részben általunk vizsgált, részben az irodalomból vett nyiltláncu és ciklusos alkán

*A "Szénhidrogénreakciók mechanizmusa" c. szimpóziumon elhangzott előadás /Siófok, 1973. junius 5-7/.

bomlásának néhány jellemző adatát pedig a *II. táblázatban* foglaltuk össze, mig a *III.* és *IV. táblázatban* alifás, illetve ciklusos monoalkének hidrogénhozamai találhatók.

ALKÁNOK

A *II. táblázat* 2. és 3. oszlopa a ciklusos és a nyiltláncu alkánoknál a sugárzás által aktivált és a továbbiakban C-H vagy C-C kötésszakadással bomló molekulák jellemzésére alkalmazható $G/H_2/$ és G/C-C/értékeket tartalmazza.

Mivel egy-egy H_2 molekula kialakulásához általában egy-egy, a sugárzás által aktivált alkán-molekula használódik fel, a $G/H_2/$-értékek első közelitésben elfogadhatók a sugárzás által aktivált azon molekulák hozamának számszerü jellemzésére, amelyeknél a C-H kötésszakadások mennek végbe.

Az *I. táblázatban* bemutatott cikloheptán hozamadataiból látható, hogy a sugárzás során viszonylag jelentős számban képződnek a molekula C-C kötésszakadására visszavezethető termékek. Ezek egy részének képződéséhez elegendő a cikloheptán molekula egyetlen C-C kötésének szakadása, mig a C_1-C_5 termékek kialakulása csak a kiinduló molekula legalább két C-C kötésének disszociálásával képzelhető el.

A G/C-C/ értéket az egyes termékek hozama alapján, az anyagmérlegből a következő módon becsültük:

G/n-heptán+heptének+heptadiének/	= 0,45	molekula/100 eV
G/metil-ciklohexán/	= 0,17	"
G/gyürütöredék/	= 0,07	"
G/n-heptil-cikloheptán+n-heptenil-cikloheptán/	= 0,16	"
G/C-C/	0,85	molekula/100 eV

A *II. táblázatban* összegyüjtött adatokból mindenekelőtt megállapitható, hogy a ciklopropánon kivül valamennyi tanulmányozott szénhidrogénnél a $G/H_2/+G/C\text{-}C/ = G/\Sigma/$-érték, tehát a sugárzás által aktivált és a továbbiakban C-C vagy C-H szakadással bomló molekulák teljes sugárhatáskémiai hozama, jó közelitéssel állandó, $G/\Sigma/ = 6{,}6 \pm 0{,}5$. Ez azt igazolja, hogy a sugárzás és az anyag kölcsönhatása során képződő ionizált és/vagy gerjesztett molekulák száma a táblázatban szereplő alkánoknál gyakorlatilag független a szénhidrogén molekulák szerkezetétől.

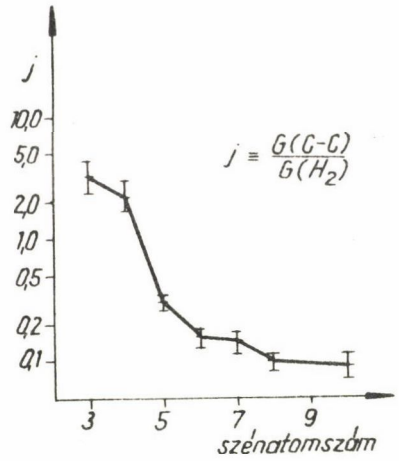
A táblázat 5. oszlopa, illetve az *1. ábra* az aktivált molekulák C-C és C-H kötésszakadásai arányára jellemző $j = \frac{G/C\text{-}C/}{G/H_2/}$ értékeket tartalmazza. Az összeállitásban szereplő 3-7 szénatomos *n-alkánok* $G/H_2/$, illetve G/C-C/ értékei és ezáltal j-adatai jó közelitéssel azonosak.

A *ciklusos alkánoknál* azonban a helyzet lényegesen eltérő. A ciklopropán

I. táblázat

A cikloheptén sugárhatáskémiai bomlásának zérus besugárzási dózisra vonatkoztatott G-értékei

Termék	G
Hidrogén	5,75
Metán	0,005
Etán	0,006
Etilén	0,055
Acetilén	0,014
Propán	0,008
Ciklopropán	0,006
Propilén	0,032
Allén	0,002
n-Bután	0,003
n-Butének	0,018
1,3-Butadién	0,010
n-Pentán	0,003
n-Pentének	0,021
1-Heptén	0,29
n-Heptán	0,10
n-Heptadiének	0,03
Metil-ciklohexán	0,17
Cikloheptén	3,1
Bicikloheptán	2,1
n-Heptil-cikloheptán	0,12
n-Heptenil-cikloheptán	0,04



1. ábra

Alkánok C-C és C-H szakadási reakcióinak aránya

II. táblázat

Alkánok sugárhatáskémiai bomlásának jellemző adatai

Szénhidrogén	$G/H/_2$	$G/C-C/$	$G/\Sigma/=G/H_2/+G/C-C/$	$j=\frac{G/C-C/}{G/H_2/}$	Dózis Mrad
Propán /b/	5,0±0,1	1,58±0,1	6,58±0,2	0,32±0,03	1,0
n-Bután /c/	4,80±0,1	1,57±0,2	6,37±0,3	0,33±0,04	2
n-Pentán /d/	5,1±0,1	1,43±0,1	6,53±0,2	0,28±0,02	0,8
n-Hexán /e/	5,01±0,1	1,56±0,1	6,57±0,2	0,31±0,02	1,3
n-Heptán /f/	5,0±0,1	1,35±0,2	6,35±0,3	0,27±0,05	0,1-2,0
ciklopropán	1,15±0,1	3,70±0,5	4,89±0,6	3,2±1,0	/a/
ciklobután	2,05±0,2	4,6±0,6	6,65±0,8	2,2±0,6	~ 3
ciklopentán /g/	5,35±0,1	1,6±0,1	6,95±0,2	0,30±0,02	/a/
ciklohexán	5,6±0,1	0,90±0,1	6,50±0,2	0,16±0,02	/a/
cikloheptán	5,75±0,1	0,85±0,1	6,60±0,2	0,15±0,02	/a/
ciklooktán	5,9±0,1	060±0,1	6,50±0,2	0,10±0,02	/a/
ciklodekán	5,95±0,1	$055^{+0,2}_{-0,1}$	$6,50^{+0,3}_{-0,2}$	$0,9^{+0,03}_{-0,02}$	/a/

Megjegyzések:

/a/ zérus besugárzási dózisra extrapolált adatok:

/b/ szénhidrogéntermékek az [1] , hidrogén hozam a [2] hivatkozásból;

/c/ a $G/H_2/$-érték a [3] a C_1-C_3 termékek a [4] , a C_5-C_7 termékek a [5] hivatkozásból;

/d/ [6] hivatkozás;

/e/ [7] hivatkozás;

/f/ [8] hivatkozás;

/g/ [9] hivatkozás.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

III. táblázat

Alifás monoalkének G/H_2/-értékei, a különböző C-H kötések száma és rendüsége

Vegyület	G/H_2/	Allil- C-H			Nem-allil C-H	Hivatkozás
		primer	szekunder	tercier		
Propilén	0,60	3	-	-	3	15
1-Butén	0,74	-	2	-	6	16
cisz-2-Butén	1,02 0,96	6	-	-	2	17
1-Pentén	0,83	-	2	-	8	
1-Hexén	0,90	-	2	-	10	
cisz-, transz-2-Hexén	1,37	3	2	-	7	12
transz-3-Hexén	1,64 1,61	-	4	-	8	14
1-Heptén	0,94	-	2	-	12	
1-Oktén	0,98	-	2	-	14	
cisz-, transz-2-Oktén	1,42	3	2	-	11	
transz-3-Oktén	1,63	-	4	-	12	
transz-4-Oktén	1,61	-	4	-	12	12
1-Decén	1,10	-	2	-	18	
transz-5-Decén	1,70	-	4	-	16	
1-hexadecén	1,30	-	2	-	30	18

IV. táblázat

Ciklusos monoalkének G/H_2/-értékei, a különböző C-H kötések száma és rendüsége

Vegyület	G/H_2/	Allil C-H			Nem-allil C-H	Hivatkozás
		primer	szekunder	tercier		
ciklobutén	0,79	-	4	-	2	19
ciklopentén	1,20 1,28	-	4	-	4	20 21
ciklohexén	1,26 1,19	-	4	-	6	20
cikloheptén	0,98	-	4	-	8	
cisz-ciklooktén	0,85	-	4	-	10	12
cisz-transz-ciklodecén	1,02	-	4	-	14	
cisz-transz-ciklododecén	1,60	-	4	-	20	

és a ciklobután C-C szakadásainak mértéke jóval nagyobb a C-H szakadásokénál. A ciklopentán C-C, illetve C-H kötésszakadásainak aránya közelitőleg azonos a nyiltláncu alkánokéval, de a ciklohexán > cikloheptán > ciklooktán > ciklodekán sorrendben a C-C kötésszakadások aránya egyre kisebb.

A C_3 és C_{10} között a j-értékek csökkenése a ciklusos gyürük szénatomszáma növekedtével, illetve C_4 felett a G/Σ/ értékek közelitő állandósága egyben azt jelenti, hogy az azonos körülmények között végzett besugárzás során az egymással kompetitiv C-H és C-C szakadási folyamatok közül a szénatomszám növekedtével a hidrogénfejlődésre vezető reakciók sebessége válik egyre nagyobbá. A cikloalkánokat a normál alkánokkal összehasonlitva megállapitható, hogy a ciklopropán és a ciklobután hidrogénfejlődési folyamatainak sebessége lényegesen kisebb, a ciklohexáné, cikloheptáné, ciklooktáné és a ciklodekáné pedig nagyobb a nyiltláncu alkánokénál.

Nézetünk szerint a ciklusos szénhidrogének sugárhatáskémiai bomlását alapvetően az befolyásolja, hogy a megfelelő nyiltláncu vegyületekhez képest a gyürük szénatomszámával erősen változó nagyságu és eredetü többlet képződési entalpiával, un. feszülési energiával rendelkeznek. A C_3, C_4, C_5, C_6, C_7, C_8 és C_{10} gyürük feszülési energiái 27.6, 26,2, 6.3, 0, 6.4, 9.9 és 13.3 kcal/mól[11].

A ciklopropán és a ciklobután C-C kötéseinek erőssége a termikus krakkolódási reakciókban tapasztalható viszonylag kis aktiválási energiáju gyürübomlásuk alapján lényegesen kisebb a nyiltláncu alkánokénál; ezzel összhangban sugárhatáskémiai bomlásukkor nagymértékü gyürübomlás tapasztalható. Elsősorban a C-C kötésszögek erős torzulásaira visszavezethető feszültségük egyértelmüen a C-C kötések szakadásának kedvez, és ez viszonylag nagy j-értékeket eredményez.

Az elágazás nélküli C_7-C_{10} cikloalkánok bomlásakor annak ellenére, hogy a teljes feszülési energia felszabadulásával járó gyürübomlás termodinamikailag viszonylag kedvező reakció, a C-C bomlási termékek képződési sebessége kisebb, mint az n-alkánoknál, sőt a gyürübomlási termékek hozama a reakciók energetikailag kedvezőbbé válásával, a feszülési energia növekedésével csökken. Ugyanakkor a szénatomszámmal nő a hidrogénképződésre vezető reakciók sebessége, és a G/H_2/-értékek nagyobbak, mint a megfelelő nyiltláncu alkánoknál.

Ez a jelenség annak a következménye lehet, hogy a C_7-C_{12} cikloalkánok a nyiltláncu alkánokhoz képest viszonylag kedvezőtlen elrendeződésü hidrogén atomjai között jelentős van der Waals taszitó kölcsönhatások lépnek fel, melyek a C_8-C_{10} gyürüknél a leginkább számottevőek. A hidrogénfejlődési folyamatok sebességének növekedése a C_7-C_{10} ciklusos gyürük szénatomszámával, illetve azonknak a nyiltláncu alkánok megfelelő folyamatait meghaladó sebessége tehát kapcsolatban állhat a cikloalkánokon, a nyiltláncu alkánokhoz képest

"zsufoltan" elhelyezkedő és ezáltal "lazitott" hidrogén atomoknak a szénatomszám növekedésével egyre kedvezőbb leválaszthatóságával. Ez a hatás a növekvő szénatomszámmal határozottabbá válik, csökken a szénhidrogén és növekszik a H_2 hozam, tehát végeredményben a j-értékek csökkennek.

ALKÉNEK

Az alkánok G/H_2/-értéke a dózis növelésével csökken, amit a keletkezett telitetlen szénhidrogének fizikai védőhatása mellett a képződött gyökökkel való reakciói magyaráznak.

Telitett-telitetlen elegyekben és tiszta alkének esetén is, a primeren képződő hidrogénatomok egy része a π-kötéseken addicionálódik; másik részük pedig mind a telitett, mind a telitetlen komponensről hidrogént absztrahál és ezáltal hidrogén molekulává alakul.

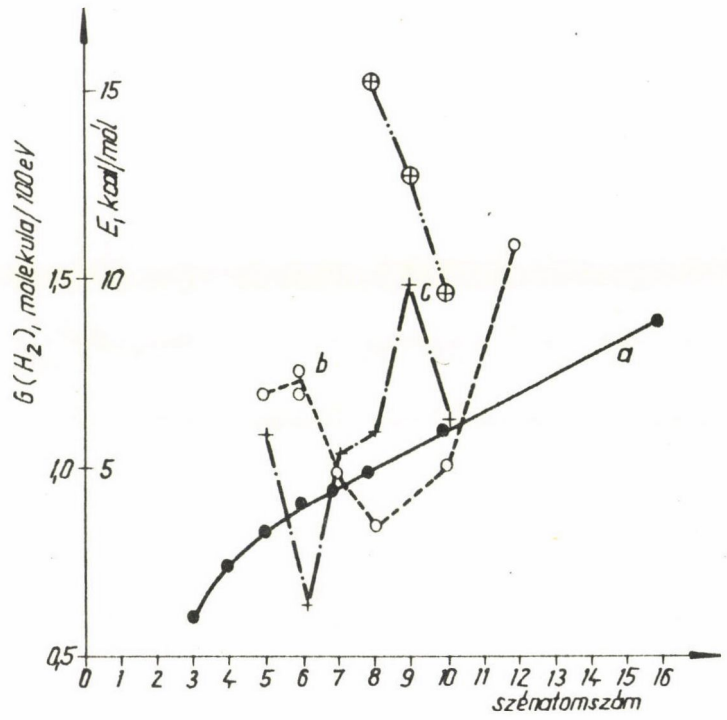
Bár az alkének sugárhatáskémiai reakcióinak irodalma nagy, dehidrogénezésüket csak kevés dolgozat tárgyalja, mivel a legtöbb monográfia és közlemény alapvetően a polimerizáció különféle kérdéseit érinti.

Néhány alifás alkén sugárhatáskémiai hidrogénfejlődési hozamát a *III. táblázatban* foglaltuk össze. Az adatokból kitünik, hogy a G/H_2/-érték erősen függ a molekula szerkezetétől, pl. a különféle tipusu C-H kötések számától.

A táblázat adatai szerint az egyes alifás alkének G/H_2/-értékei között jelentősek a különbségek. Mig a különböző szénatomszámu homológok közötti eltérés általában elég kicsi, az azonos összegképletü izomerek között nagyok a különbségek: pl. az 1-hexén, 2-hexén, illetve 3-hexén G/H_2/-értéke 0,90, 1,37, illetve 1,64; Kisérleteink[12,13] arra utalnak, hogy az alkének G/H_2/-értékére különösen a π-kötés helyének van befolyása; a dehidrogénezés mértéke elsősorban a π-kötéshez képest allil helyzetü C-H kötések gyengitettségével függ össze.

A *2. ábra* görbéje szerint a *normál alkének* G/H_2/-értékei a szénatomok számával enyhén nőnek, közelitőleg annak megfelelően, hogy egy-egy szénatomszám növekedéssel két-két ujabb szekunder nem-allil helyzetü hidrogénatom jár együtt. Ez a monoton jellegü változás azonban a cikloalkéneknél nem mutatkozik.

Akárcsak a ciklusos alkánok, a *ciklusos alkének* is másként viselkednek, mint a megfelelő alifás szénhidrogének. A ciklohexén G/H_2/-értéke pl. mintegy 20-25%-kal kisebb, mint a 3-hexén sugárhatáskémiai hidrogénhozama, annak ellenére, hogy mindkettő egyaránt négy allil-helyzetü szekunder hidrogénatommal rendelkezik. Ezek szerint a ciklusos alkéneknél a sztérikus hatásoknak nagyobb a jelentőségük, mint az alifásoknál.



2. ábra

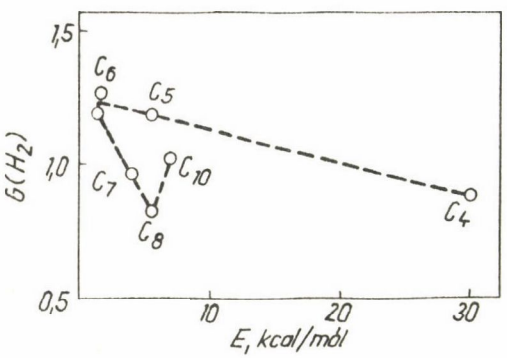
Monoalkének G/H_2/-értékei a szénatomszám függvényében

a---------1-alkének

b---------cikloalkének

c gyürüfeszülési energia -·-·- cisz izomer

-·-·-· transz izomer



3. ábra

Cikloalkének G/H_2/-értékei a feszülési energia függvényében

A 2. ábra b és c görbéjének összehasonlitása arra utal, hogy a C_4-C_{12} gyürüknél meglehetősen szoros a negativ korreláció a feszülési energia és a G/H_2/-értékek között, de a feszülési energia egy nagyságrenddel történő növelése is mindössze 20-30% G/H_2/-érték csökkenéssel jár /3. ábra/. Ennek okai között szerepel egyrészt pl. hogy a feszülési energia maga is összetett és a különböző összetevők /szögtorzulás, kötésnyulás, torziós és van der Waals taszitás/ nagysága a gyürü szénatomszámával jelentősen változik, másrészt a hidrogén képződés mértékét nemcsak a kiindulási, hanem az átmeneti állapot feszülési viszonyai is befolyásolhatják.

Más, de a feszülési energia és a G/H_2/-értékek között észlelt negativ korrelációval összhangban álló feltételezés szerint a gyürüméret és a G/H_2/-érték közötti összefüggés arra vezethető vissza, hogy a molekulákban mennyire képes maximális pályaátfedéssel allil-tipusu gyök kialakulni, ami valószinüleg a legalkalmasabb átmeneti állapot a hidrogénleválás számára. Maximális pályaátfedésü atom kötésiránya merőleges az etilén-csoport sikjára. Ebben az esetben a π-kötés elektronjai és az allil helyzetü C-C kötés elektronjai párhuzamosan orientáltak. Ilyen elrendezés kialakulása - ha nagymértékü szubsztitució ezt nem gátolja - az alifás alkéneknél "szabad" rotálás révén az összes allil C-H kötésre lehetséges. A cikloalkéneknél azonban a C_{12}-es gyürüig az allil csoport mozgási lehetősége és igy az allil kölcsönhatás kialakulása is erősen korlátozott.

Modellek segitségével megállapitható, hogy a molekula asszimetrikus csavarodottsága és zsufoltsága a ciklohexénen át a ciklononénig egyre fokozódik, miáltal az allil helyzetü C-H kötések iránya mind jobban eltér a maximális pályaátfedést biztositó merőleges iránytól. Az ilyen elrendeződés az allilrezonancia csökkenéséhez, illetve az aktiválási energia növeléséhez, végeredményben csökkent hidrogénhozamhoz vezet.

A gyürü méretének további növelése során a molekulaszerkezet ugy alakul, hogy az allil kölcsönhatás számára a hidrogénatomok orientációja egyre kedvezőbbé válik, mig végül már megközeliti a nyiltláncu alkéneknél lehetséges állapotot. Ennek megfelelően a 8 vagy 9 szénatomszámuaknál nagyobb cikloalkéneknél ismét növekednie kell a G/H_2/-értéknek. A C_5-C_8, C_{10} és C_{12} cikloalkének mért G/H_2/-értékei ezt a feltételezést igazolni látszanak, bár a kérdés teljes tisztázására még további vizsgálatok szükségesek.

Összefoglalva, kisérleteinkből az alábbi következtetéseket vontuk le:

1. A ciklusos szénhidrogének sugárhatáskémiai bomlási reakciói eltérnek a megfelelő alifásokétól. Mig az egyes normál szénhidrogén homológok sugárhatáskémiai bomlása között nincs jelentős különbség, addig a ciklikus radiolizise erősen függ a gyürü szénatomszámától.

2. A kisérleti adatok arra utalnak, hogy a ciklusos szénhidrogének reakcióképességét nemcsak a nyiltláncu szénhidrogénekhez viszonyitott többlet

bruttó képződési hőjük /feszülési energia/ befolyásolja, hanem lényeges szerepet játszanak annak összetevői, pl. kötéstorzulás, a H-atomok taszitása is.

3. A 4 szénatomosnál nagyobb egyenesláncu és a ciklusos alkánok a sugárzás által aktivált, és a továbbiakban C-C vagy C-H kötésszakadással bomló molekulái együttes hozama közelitőleg állandó, $G/\Sigma/ = 6,6 \pm 0,5$. A molekulák szerkezeti felépitése elsősorban a C-C és C-H kötésszakadási folyamatok arányát befolyásolja, tehát a C-H és a C-C kötésszakadások között kompetició észlelhető.

4. Az alkének hidrogén hozamai elsősorban az allil helyzetü C-H kötések számától, rendüségétől és az allil-tipusu gyök kialakulásának lehetőségétől függnek. Az allil-tipusu gyök kialakulása a nyiltláncuaknál a rotálás lehetősége miatt adott, ugyanakkor a kis és közepes méretü cikloalkéneknél korlátozott.

IRODALOM

1. *P.D. Koob, L. Kevan.*, Trans. Faraday Soc., 64, 1 /1968/
2. *N. Fujisaki, S. Shida, Y. Hatano*, J. Chem. Phys., 49, 556 /1970/
3. *S. Shida, N. Fujisaki, Y. Hatano*, J. Chem. Phys., 49, 457 /1968/
4. *N. Fujisaki, S. Shida, Y. Hatano, K. Tanno*, J. Phys. Chem., 75,2854 /1971/
5. *T. Miyazaki, S. Shida, S. Sunokara*, Bull. Chem. Soc. Japan, 37,1352 /1964/
6. *R.O. Koch, J.D.W. Houtman, W.A. Cramer*, J. Am. Chem. Soc., 90, 3326 /1968/
7. *S. Shinsaka, S. Shida*, Bull. Chem. Soc. Japan, 43, 3728 /1970/
8. *V.I. Pichuzhkin, V.V. Saraeva, N.A. Bach*, Khim. vysokikh energy, 2, 151 /1968/
9. *G.R. Freeman*, Radiation Kes.Rev., 1, 1 /1968/
10. *N.L. Allinger, M.T., Trible, M.A. Miller, D.H. Wertz*, J.Am. Chem. Soc., 93, 1637 /1971/
11. *S.W. Benson*, Thermochemical Kinetics, Wiley, New York 1968. s.a.
12. *Gy. Cserép, G. Földiák*, Acta Chim. /Budapest/,
13. *Gy. Cserép, G. Földiák*, Int.J. Radiat. Phys. Chem., 5, 235 /1973/
14. *J.L. Brash, M.A. Golub*, Can. J. Chem., 46, 594 /1968/
15. *C.D. Wagner*, Tetrahedron, 14, 164 /1961/
16. *Y. Hatano, S. Shida*, J. Chem. Phys., 46, 4784 /1967/
17. *Y. Hatano, S. Shida, S. Sato*, Bull. Chem. Soc. Japan, 37, 1854 /1964/
18. *E. Collinson, F.S. Dainton, C.D. Wagner*, Trans Farady Soc. 57, 1732 /1961/
19. *G. Földiák, Zs. Zorváth*, 3rd Tihany Symposium on Radiation Chemistry, edited by J. Dobó and P. Hedvig, Akad. Kiadó, Budapest, 1972
20. *J.Y. Yang, J. Marcus*, Chem. Phys., 42, 3315 /1965/
21. *G. Földiák, L. Wojnárovits*, 3rd Tihany Symposium on Radiation Chemistry, edited by J. Dobó and P. Hedvig, Akad. Kiadó, Budapest.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 307-327

SUGÁRREZISZTENS FÉLVEZETŐ DETEKTOR ELŐÁLLITÁSA ÉS γ-DÓZISINTENZITÁSOK MÉRÉSÉRE TÖRTÉNŐ ALKALMAZÁSA

Osvay M.,* Tárczy K.**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest
**Villamos Berendezés és Készülék Müvek, Budapest

A p tipusu Si kristályban létrehozott p-n átmenet nagy sugárérzékenységénél és sugárrezisztens tulajdonságánál fogva alkalmasabb sugárzásdetektorként, mint az n tipusu kristály.

Использование радиостойких полупроводниковых детекторов для измерения мощных доз излучения
Ошваи, М., Тарци, К.

p-n переход, созданный в кристалле Si, благодаря его высокой радиочувствительности и радиостойкости, как детектор излучений, превосходит кристаллы типа n.

Use of Radioresistant Solid State Detectors for the Measurement of High Radiation Doses.
Osvay, M., Tárczy, K.

p-n junctions formed in Si crystals, due to their higher radiosensitivity and radioresistance, proved to be more convenient detectors than n-type crystals.

1. BEVEZETÉS

A nagy aktivitásu sugárforrások elterjedése a gyógyászatban, iparban, mezőgazdaságban és a kutatásban szükségessé teszi nagy dózisteljesitmények /10^2-10^9 R/h/ mérésére alkalmas eszközök és módszerek kidolgozását.

Az eddig használatos eszközök /ionizációs kamrák, kalorimeterek, kémiai doziméterek, termolumineszcens doziméterek, stb./ használata mellett az utóbbi években a félvezető anyagokból készült sugárzásdetektorok gyors térhódításának lehetünk tanui. Fejlődésük első szakaszában, az 1960-as években főleg a magfizikusok körében terjedtek el, akik részecskék, protonok és hasadási termékek detektálására, valamint energiájuk mérésére használták. Az utóbbi időben alkalmazási körük egyre szélesebb lett, a nukleáris méréstechnika számos ágában használják[1-6] és sok területen kiszoritják a korábbi detektorokat.

Célkitüzésünk olyan félvezető detektor előállitása volt, amely az eddig használt *n* tipusu detektornál[6] sugárellenállóbb, érzékenyebb és igy több nagyságrendet átfogó dózisintenzitás-tartomány egyszerü, gyors mérését teszi lehetővé.

Feladatunk megoldásához elméleti uton meghatároztuk a fényelem-tipusu /rövidrezárt *p-n* átmenetü/ félvezető detektorok rövidzárlati áramát. Számitásaink eredményéből arra következtettünk, hogy ha *p* tipusu sziliciumból állitunk elő sugárzás-detektort, az ellenálóbb és érzékenyebb lesz, mint az eddig használt *n* tipusu detektor.

2. A FÉLVEZETŐ DETEKTOROK MÜKÖDÉSÉNEK ELMÉLETI KÉRDÉSEI

2.1. A félvezetők néhány tulajdonsága

Ha a félvezetőt "megvilágitjuk" olyan fénnyel, amelynek energiakvantuma nagyobb a tiltott sáv/E_g/ szélességénél /Si esetén E_g=1,12 eV/, akkor töltéshordozók jutnak a valenciasávból a vezetési sávba, tehát többlet elektron-, illetve lyuk-koncentráció generálható.

Igy a félvezető vezetőképessége a megvilágitás intenzitásának függvényében változik, azaz alkalmas röntgen-, γ-sugárzás, fény, vagy töltött részecskék detektálására egyaránt. Az 1. ábrán látható, hogy a fotonok és töltött részecskék hatására létrejövő ionizációnál közel lineáris az összefüggés a fotonenergia és a "kvantumhatásfok" $\frac{h\nu}{\varepsilon}$ között[7].

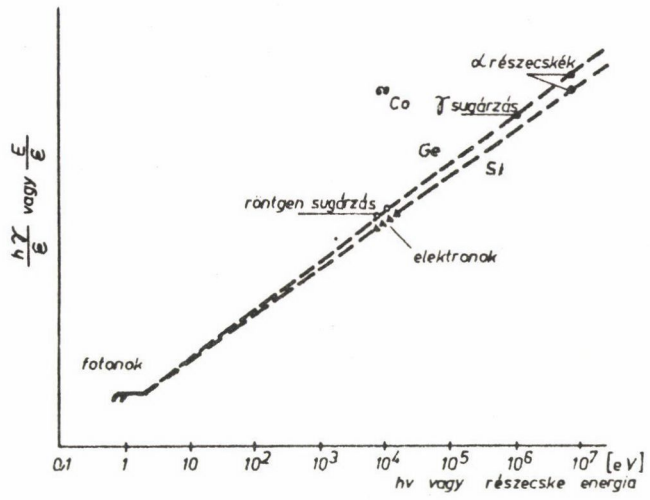
A félvezetőtechnikában használatos félvezető alapanyagok /Si, Ge/ fajlagos ellenállása 1000-10 000 Ω cm extrém tiszta állapotban. "Félvezetőkké" csak akkor válnak, ha azokba szennyezés segitségével töltéshordozókat viszünk be, vagy kristályhibákat keltünk /pl. radioaktiv sugárzással/. A szennyezések és kristályhibák megváltoztatják a félvezető elektromos sajátságait.

Azt a szennyező atomot, amely ionizálva egy elektront képes a rácsnak leadni, donornak nevezzük. Az As, P, Sb szennyezés donor-szennyezést hoz létre a Si és Ge kristályban. A 3 vegyértékü B, Al, Ga, In akceptorokat képez, azaz elektront vesz fel a valenciasávból. Az elektron helyén lyuk marad vissza.

A szennyezés módjától függően pozitiv /*p* réteg/ és negativ /*n* réteg/ töltéshordozókat tartalmazó félvezetőket lehet előállitani. A 2. ábrán láthatók a félvezető energiaszintjei. Ha egy *p* és egy *n* tipusu félvezető érintkezik, akkor a kettő között töltéshordozó-mentes, un. kiüritett /átmeneti/ réteg alakul ki.

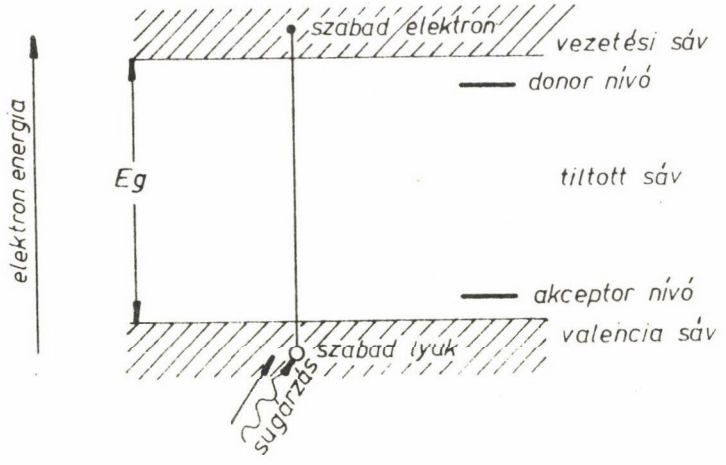
2.2. Tértöltés-réteg, kontakt potenciál

A *p*-tipusu és *n*-tipusu réteg között a szabad töltéshordozók diffuziója következtében az alapkristálytól és a szennyező anyag koncentrációjától függő



1. ábra

Ge-ban és Si-ban fotonok és töltött részecskék hatására létrejövő ionizáció[7]
/E a töltött részecskék energiája MeV-ban,
hν a fotonok energiája,
ε egy elektron-lyuk pár keltéséhez szükséges energia/



2. ábra

A félvezető energiaszintjei

kontakt potenciál alakul ki. E feszültség által meghatározott szélességü rétegben nincsenek mozgásra képes töltések. Ezen tértöltés-réteg vastagsága a kialakuló kontakt potenciál négyzetgyökével arányos[8]:

$$\delta = /\eta U_o/^{1/2} /2eN/^{-1/2} \qquad /1/$$

ahol η a dielektromos állandó

e az elemi töltés

N a nem kompenzált /szennyezési/ töltéshordozó koncentrációja

A feszültség polaritása olyan, hogy mindig az n tipusu réteg pozitiv a p tipusu réteghez képest.

2.3. A félvezető detektorok tipusai

A félvezető sugárzásdetektorokat felépitésük és müködésük szempontjából a következő tipusokra oszthatjuk:

a./ Homogén /p-n átmenet nélküli/ detektorok[2,7,9]

b./ Rövidrezárt p-n átmenetü "fényelem tipusu detektorok[3,6,8]

c./ Záróirányban előfeszitett p-n átmenetü spektroszkópiai detektorok[1-2,9]

d./ Litium-drift technikával készitett n i p szerkezetü szilárdtest ionizációs kamrák.

A p-n átmenettel rendelkező detektorok érzékenysége a tértöltési réteg vastagságától függ. A tértöltési réteg δ vastagsága /azaz a detektor érzékenysége/ a p-n rétegre adott záróirányu feszültség /U/ és kontakt potenciál /U_o/ összegének négyzetgyökével arányosan nő:

$$\delta \propto \sqrt{U + U_o} \qquad /2/$$

Szilicium esetén az $U_o \sim 0{,}6$ V. Az ehhez tartozó 5-10μ érzékeny réteg vastagsága közel 30-szor nagyobb lesz 500 V zárófeszültségnél.

Természetesen a detektorok érzékenysége az alapanyag szennyezési koncentrációjától is függ az /1/ összefüggés szerint. Az /1/ összefüggés p tipusu szilicium detektor esetén megközelitően a következő alakban irható[10]:

$$\delta = \sqrt{10^{-9} \rho (U + U_o)} \qquad /3/$$

ahol ρ a fajlagos ellenállás Ω cm-ben.

2.4. A p-n réteg kapacitása

A félvezetőréteg C kapacitása és a tértöltési réteg X vastagsága közötti összefüggés a sikkondenzátor elektrosztatikából jól ismert képlete alapján[11-12] a következő:

$$c = \frac{\eta f}{4\pi\delta} \qquad /4/$$

ahol f a p-n átmenet területe
η a dielektromos állandó

A p-n réteg kapacitásának csökkenésével nő a félvezető detektor felbontóképessége.

2.5. ^{60}Co γ-sugárzás hatására p-n átmenetekben fellépő rövidzárlati áram és a diffuziós szabad uthossz közötti összefüggés

Sugározzuk be a 3. ábrán látható p-n réteget ^{60}Co γ-sugaraival. A sugárzás hatására fellépő rövidzárási áram arányos a p-n rétegben Compton kölcsönhatás révén időegység alatt elnyelt energiával.

Tételezzük fel, hogy:

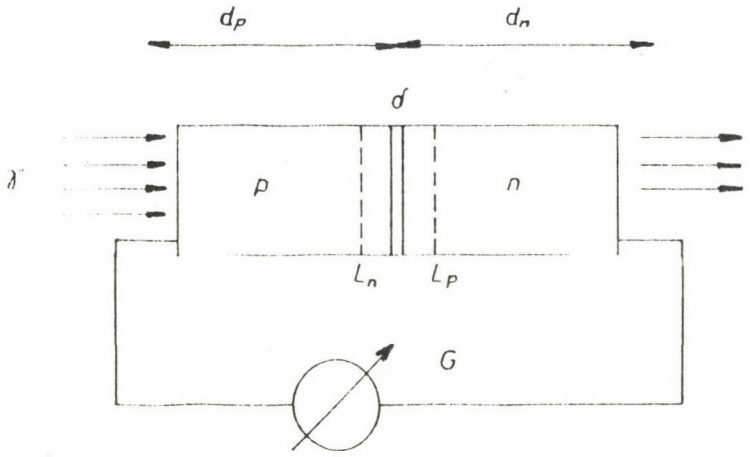
a./ a γ-sugárzással létrehozott többlet töltéshordozók képződése az egész térfogatban állandó:

b./ $\delta \ll L_n$ és L_p, ahol δ a kiüritett réteg vastagsága, L_n az elektronok diffuziós hossza a p tipusu rétegben, L_p a lyukak diffuziós hossza az n tipusu rétegben.
Ez a feltétel azt jelenti, hogy elhanyagolható a nem egyensulyi töltéshordozók rekombinálódása az elektron-lyuk átmenet belsejében/;

c./ az átmeneten kivül az áramot csak a nem egyensulyi töltéshordozók diffuziója határozza meg /az átmeneten kivül az elektromos térerősség nulla/;

d./ a nem egyensulyi töltéshordozók koncentrációja az alapáram egyensulyi koncentrációjához képest kicsi;

e./ a fém-félvezető érintkezés ohmikus.



3. ábra

Rövidzárási áram mérése p-n rétegben γ-sugárzás hatására

Az előbbi feltételek teljesülése esetén a *p-n* rétegen át folyó áramot a következő kifejezés adja[8]:

$$I = eL_p f\left[\left(\exp\frac{eV}{KT}-1\right)g_p - g\right]\frac{1-e^{-\frac{2d_n}{L_p}}}{1+e^{-\frac{2d_n}{L_p}}} + eL_n f\left[\left(\exp\frac{eV}{KT}-1\right)g_n - g\right]\frac{1-e^{\frac{-2d_p}{L_n}}}{1+e^{\frac{-2d_p}{L_n}}} \qquad /5/$$

ahol e az elektron töltése;

V a *p-n* átmeneten γ-besugárzás hatására fellépő potenciálkülönbség;

g_p és g_n a képződött lyukak, illetve elektronok termikus egyensulyi feltételek között a *p-n* átmenet *n* illetve *p* tipusu részében;

d_n és d_p a *p* és *n* tipusu réteg szélessége;

f a *p-n* átmenet területe;

g a nem egyensulyi hordozók képződési száma térfogategységben időegység alatt;

Ha a *p-n* átmenetet rövidrezárjuk V=0, akkor megkapjuk a *p-n* átmeneten át folyó rövidzárlati áramot /I_r/ a besugárzás hatására:

$$I_r = eL_p gf\frac{1-e^{-\frac{2d_n}{L_p}}}{1+e^{-\frac{2d_n}{L_p}}} + eL_n gf\frac{1-e^{-\frac{2d_p}{L_n}}}{1+e^{-\frac{2d_p}{L_n}}} \qquad /6/$$

Alkalmazzuk a /6/ összefüggést a mi esetünkre és határozzuk meg a rövidzárlati áramot két speciális esetben:

a/ $d_n \gg L_p$, $d_p \gg L_n$ tehát a *p-n* réteg "vastag" a diffuziós uthosszhoz képest. Ekkor a /6/ összefüggés a következő egyszerü alakban irható fel:

$$I_r = egf\left(L_p + L_n\right) \qquad /7/$$

A /7/ csak $d_n \geq (2\text{-}3)L_p$ és $d_p \geq (2\text{-}3)L_n$ feltétel esetén teljesül.

Ha számitásba vesszük magában az elektron-lyuk átmenetben végbemenő nem egyensulyi áramhordozók keletkezését, akkor a rövidzárlati áramra a következő kifejezést kapjuk:

$$I_r = egf\left(L_p + L_n + \delta\right) \qquad /8/$$

A gyakorlatban az az eset érdekes, amikor elhanyagolhatjuk az egyik diffuzióhosszat /n tipusu alapkristály esetén az L_n-t, p tipusu kristály esetén a L_p-t, mivel az áramhordozók szerepét a kisebbségi töltéshordozók töltik be/ és a p-n átmenet szélességét.

Ekkor

$$I_r = e\, g\, L_p\, f \qquad /9/$$

$$I_r = e\, g\, L_n\, f \qquad /10/$$

A Si /n/ jelü detektorunkra a /9/ összefüggés érvényes, mert abban a kisebbségi töltéshordozók a lyukak és érvényes a $d_n \geq (2\text{-}3)\, L_p$ feltétel.

Tehát detektorunk esetén a besugárzás hatására folyó rövidzárlati áram a lyukak diffuziós szabad uthosszától függ.

b/ $d_n \ll L_p$, $d_p \ll L_n$. Tehát a detektor "vékony" a diffuzióhosszhoz képest. Ezen feltételünk és az $e^{-x} = \Sigma \frac{(-x)}{n!}$ függvénysor felhasználásával a /6/ helyett a rövidzárlati áramra érvényes közelités:

$$I_r = egf\,(d_n + d_p + \delta) \qquad /11/$$

Tehát a besugárzás hatására folyó rövidzárlati áram értéke nem függ a diffuziós szabad uthossztól és a töltéshordozók élettartamától. Ismeretes ugyanis, hogy a diffuziós szabad uthossz /L/, a diffuziós állandó /D/ és a töltéshordozó élettartama /τ/ között a következő összefüggés érvényes[11]:

$$L = (D\tau)^{1/2} \qquad /12/$$

Továbbá, a kristályrácsban a besugárzás hatására keletkező hibák stabil rekombinációs centrumok, amelyek nagyságrendekkel lecsökkentik a töltéshordozók élettartamát és a félvezető sugárzásdetektorok érzékenységét[13].

Elméleti megfontolásaink és számitásaink eredményeként kapott /11/ összefüggésből arra következtettünk, hogy, ha az eddig használt Si /n/ tipusu detektor helyett p tipusu szilíciumból állitunk elő vékony bázisu detektort, akkor teljesül a $d_p \ll L_n$ feltétel és sugárrezisztens detektort kapunk.

2.6. Nem egyensulyi töltéshordozók képződése γ-sugárzás hatására

A γ-sugárzás intenzitása homogén abszorbensben

a $$I = I_o e^{-\mu x} \qquad /13/$$

exponenciális függvény szerint csökken, ahol

I a primér γ-sugárzás intenzitása az abszorbens

x mélységében $\left[\text{erg cm}^{-2}\text{s}^{-1}\right]$ egységben

I_o a γ-sugárzás kezdeti intenzitása

μ lineáris gyengitési együttható.

A μ értékét a γ-sugárzás energiája és az abszorbens anyagi minősége szabja meg.

A mi esetünkben a sugárforrás ^{60}Co melynek 1,25 MeV az átlagenergiája. Ezen γ-sugárzás energiánál a legvalószinübb kölcsönhatási folyamat a Compton-effektus.

Az 1,25 MeV-es γ-kvantumok teljes gyengitési együtthatója sziliciumban /detektorunk anyagában/ a [14] alapján: $\mu=0{,}140\ \text{cm}^{-1}$ /a teljes abszorpciós együttható $\mu_a=0{,}067\ \text{cm}^{-1}$/.

A Compton-kölcsönhatás során a primér γ-kvantum energiája részben a Compton-elektron kinetikus energiájává alakul, részben szekundér kvantum létrehozására fordítódik. A Compton-elektron maximális hatótávolságánál nagyobb mintamélységben az elektron energiája elnyelődik. A szekunder kvantum Compton-effektust hozhat létre.

A másodlagos γ-kvantumokat is figyelembevéve μx kis értéke esetén a /13/ helyett a következő összefüggést kell alkalmazni[15]:

$$I = I_o\left[1-\mu\ (1-\alpha)\ x\right] \qquad /14/$$

ahol α a primér γ-kvantum energiájától és az abszorbens rendszámától függő teljes gyengitési (μ) és abszorpciós (μ_α) együtthatók relativ hányadosa:

$$\alpha = \frac{\mu - \mu_a}{\mu} \qquad /15/$$

Igy az abszorbens x mélységében lévő 1 cm^2 felületen 1 szekundum alatt elnyelt energia:

$$I = I_o - I = I_o\ (1-\alpha)\ \mu\ x \qquad /16/$$

továbbá α-t behelyettesitve

$$I = I_o\ \mu_a\ x \qquad /17/$$

Számitásba véve, hogy a besugárzott *p-n* rétegben elnyelt energia zöme nem egyensulyi töltéshordozók keltésére fordítódik és hogy egy elektron-lyuk pár közepes képződési energiája ε, a nem egyensulyi /többlet/ töltéshordozók képződésére a következő képletet kapjuk:

$$g = \frac{\Delta I}{\varepsilon x} = \frac{I_o \mu_a}{\varepsilon} \qquad /18/$$

Ha behelyettesitjük /18/-at /9/-be, a rövidzárlati áramot a

$$I_r = \frac{eLpf\ \mu_a\ I_o}{\varepsilon} \qquad /19/$$

összefüggés adja meg.

A detektoraink alapanyaga szilicium, melyre vonatkozó abszorpciós együttható[14] alapján: μ_a=0,067 cm^{-1}.

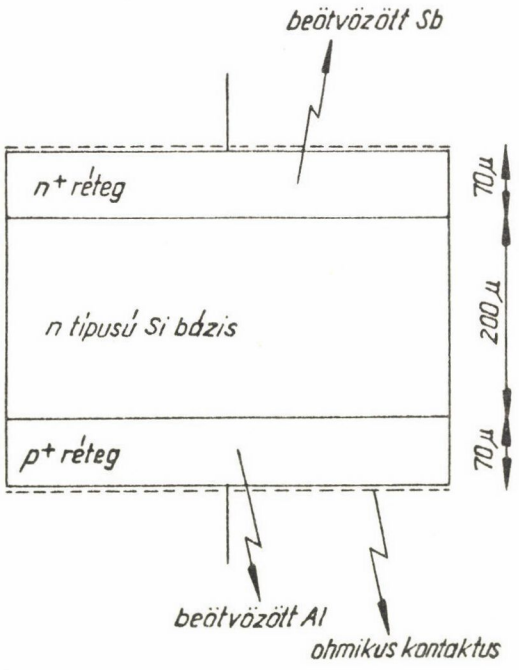
Egy elektron-lyuk pár képződéséhez szükséges energia sziliciumban: 3,81 eV[9].

Ha /19/-be behelyettesitjük a γ-sugárzás kezdeti intenzitását R/s egységben, valamint az állandók számértékét, akkor megkaphatjuk az *n* tipusu szilicium detektorunk esetén γ-besugárzás hatására fellépő rövidzárlati áramot. Továbbá a /19/ összefüggést felhasználhatjuk a töltéshordozók diffuziós szabad uthosszának a meghatározására, ha a besugárzás hatására fellépő rövidzárlati áramot kisérleti uton meghatározzuk.

3. A kisérleti berendezés leirása, mérési eredmények

3.1. Si(*n*)-tipusu félvezető detektor felépitése és γ-sugárérzékenységének vizsgálata

Az Si(*n*) detektorban a donorszennyezettség Sb, mig az akceptorszennyezést Al ötvözésével hozták létre. Ezen félvezető *p-n* réteg a kereskedelemben kapható, az Anódáramirányitó Gyár által előállitott 150 SA IN egyenirányitó dióda része. A detektor felépitése a 4. ábrán látható. A Si lap vastagsága 340 μ, az ötvözött réteg kb. 2x70 μ; a bázisvastagság 200 μ. Ezen ötvözéses technológiával kialakitott *p-n* réteg hátránya, hogy detektoronként változik az ötvözött rétegek vastagsága, igy a detektorok sugárérzékenysége is egyedenként más és más.



4. ábra

Az ötvözéses technikával kialakitott Si(*n*) tipusu detektor szerkezeti felépitése

Sugárforrásként K 120 000 tipusu ^{60}Co forrást alkalmaztunk[16]. A dózisintenzitás 1,8 MR/h=30 kR/min volt a besugárzásnál. A dózisintenzitás-mérést kémiai dózismérővel /klórbenzol/ és ionizációs kamrával végeztük.

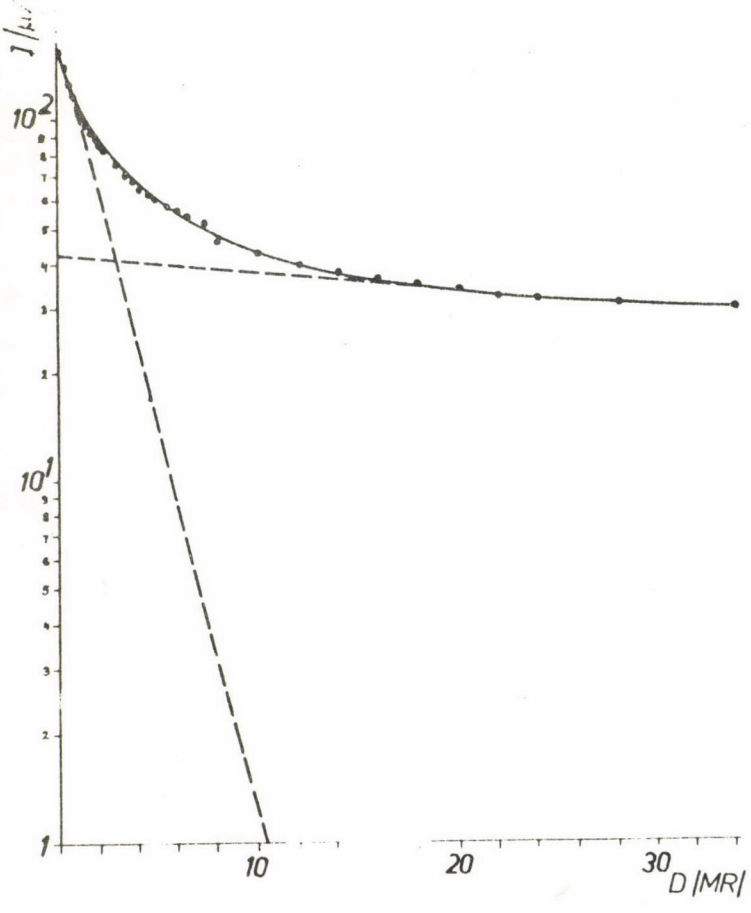
A félvezető *p-n* réteg felületére illesztett réz-konstantán termoelemmel ellenőriztük annak hőmérsékletét. A besugárzás alatt vizhütést alkalmaztunk, igy a félvezető detektor hőmérséklete a besugárzás alatt 22°C volt.

A 3. ábrán látható módon folyamatos üzemmódban mértük a rövidrezárt *p-n* átmenetben γ-sugárzással generált áramot.

Galvanométerenként nagyérzékenységü Graphispot kompenzográfot, illetve 8.10^{-9} A/skr érzékenységü Zeiss galvanométert használva folyamatosan regisztráltuk a *p-n* rétegben a besugárzás hatására létrejövő rövidzáráram-változást.

A *p-n* réteget 3x40 MR=120 MR dózissal sugároztuk be. Az 5. ábrán látható a *p-n* átmenet γ-sugárkárosodása D = 30 MR dózissal való besugárzás után.

A sugárkárosodás folyamatára a *p-n* átmenet rövidzárási áramának csökkenése mutat. A 30 MR dózis hatására bekövetkező sugárkárosodás "kinetikája" összetett. A folyamat két szakaszra bontható az 5. ábrán szaggatott vonallal jelölt érintőkkel. 10 MR besugárzási dózis eléréséig a sugárkárosodás "gyors" és "lassu" szakasza együttesen eredményezi a *p-n* átmeneten át folyó rövidzárási áram változását. A detektor érzékenysége 10 MR dózissal való besugárzás hatására mintegy 70%-kal csökken, tehát a detektor "öregszik" sugárzás hatására.



5. ábra

Az *n* tipusu alapkristályon ötvözéses technikával létesitett *p-n* átmenet γ-sugárkárosodása

A sugárkárosodás következtében az eredetileg *n* tipusu sziliciumban akceptorok keletkeznek, melyek kompenzálják a többlet donor-szennyeződést[11]. A kompenzációhoz szükséges besugárzási dózis méréseink alapján 120 MR-nek adódott.

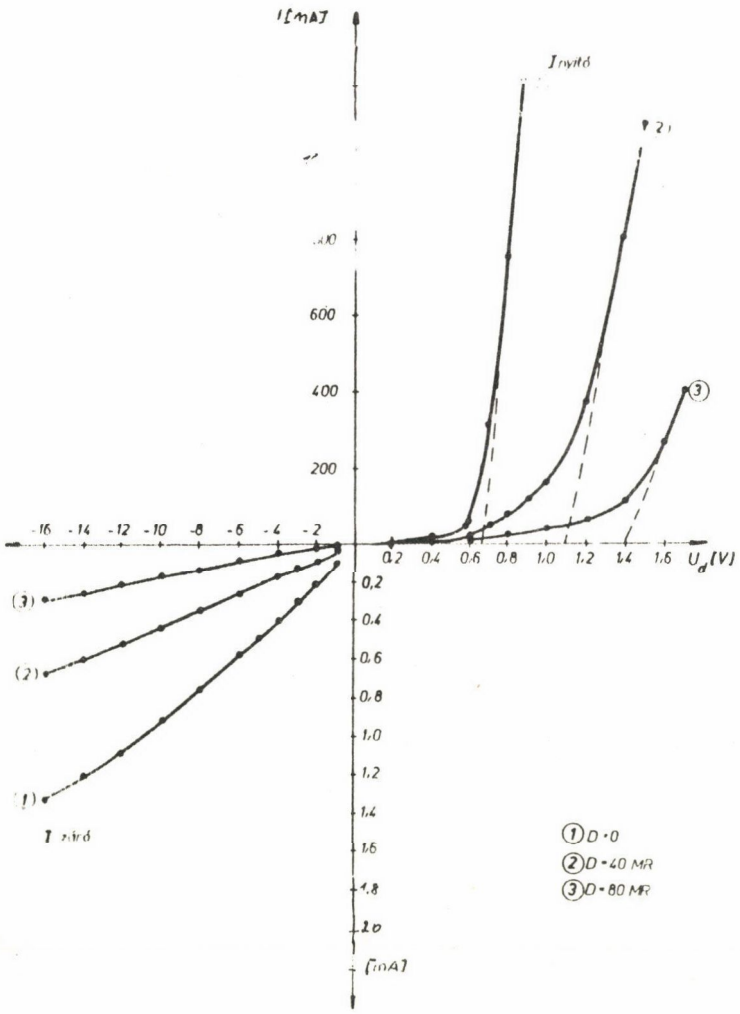
3.2. *n* tipusu szilicium detektor nyitó és záróirányu karakterisztikáinak vizsgálata

A 6. ábrán láthatók az Si(*n*) detektor feszültség-áram karakterisztikái besugárzás nélkül, valamint a 40 és 80 MR dózissal való besugárzás után.

A *p-n* rétegre adott nyitóirányu feszültség növelésével megkapjuk a küszöbfeszültséget, amelyet a jelleggörbe első szakaszán adódó töréspont határoz meg.

Ebben a pontban egyenlő a nyitófeszültség a kontaktpotenciállal. A nyitókarakterisztika első szakasza a *p-n* átmenetben folyó diffuziós áramra jellemző, amit az adott szennyeződést tartalmazó kristályban a besugárzás hatására lejátszódó folyamatok határoznak meg. A *p-n* rétegre adott nyitófeszültség további növelésével a karakterisztika II. szakaszába jutunk, mely a drift áramra jellemző közel lineáris szakasz. A karakterisztikák vizsgálata alapján megállapithatjuk, hogy

a./ besugárzás nélkül az Si(*n*) tipusu *p-n* rétegben a kontakt potenciál közel 0,6 V, ami megfelel az irodalmi adatnak[10]. A nyitóirányban előfeszitett detektor küszöbfeszültsége növekvő besugárzási dózissal eltolódik a 6. ábrán látható mértékben.



6. ábra

Si(*n*) tipusu félvezető detektor nyitó és záróirányu karakterisztikái 0, 40 és 80 MR dózissal való besugárzás után

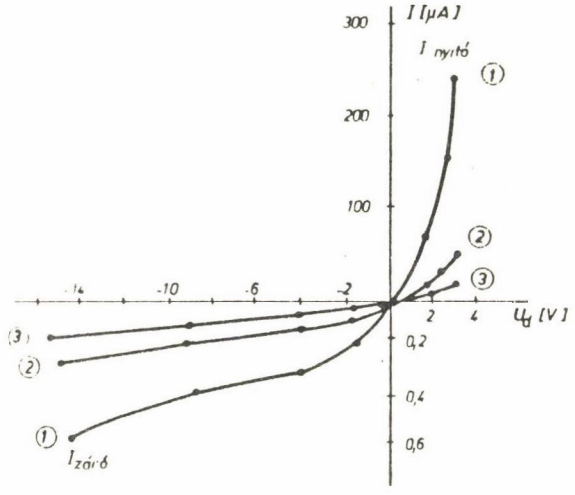
b./ megnő a detektor záróirányu ellenállása;

c./ a detektor sugárérzékenysége 80 MR dózissal való besugárzása után 86 μA/MR-ről 9 μA/MR-re, tehát mintegy 90%-kal csökken;

d./ a nyitókarakteriszika lineáris szakaszára jellemző névleges egyenáramu ellenállás értéke a besugárzási dózis növelésével nő;

e./ a vizsgált *n* tipusu szilicium detektor nem sugárrezisztens.

Bazanov és Kazarinov is hasonló jellegü vizsgálatokat végeztek. Szilicium sugárzásdetektor feszültség-áram karakterisztikáját vették fel a 7. ábrán látható módon különböző neutronfluxussal történt besugárzás után[17].



7. ábra

Egy 4mm^2-es felületü szilicium-detektor feszültség-áram karakterisztikái

① besugárzatlan detektor

②③ 10^{13}, ill. $7x10^{13}$ neutron/cm^2-es besugárzás után

3.3. Az *n* tipusu szilicium detektor stabilitása és alkalmazhatósága dózisintenzitás mérésére

A γ-sugárkárosodás hatására keletkező rácshibák stabil rekombinációs centrumoknak bizonyultak. A besugárzott detektorokat egy évig tároltuk szobahőmérsékleten, ez alatt az idő alatt sem a karakterisztikák jellemzői, sem a sugárzással öregitett detektorok sugárérzékenysége nem mutatott változást. A γ-sugárzás hatására a félvezető-detektorban keletkezett rácshibák a kristályrácsban szobahőmérsékleten elhanyagolhatóan lassu diffuzió miatt stabilnak mutatkoznak. A közel 100 MR dózissal öregitett Si(*n*) tipusu félvezető detektorral 10^3 R/h - 10^7 R/h dózisintenzitásu tereket lehet mérni. De a detektorok sugárérzékenysége kicsi és az detektoronként nagy szórást mutat. Célul tüztük ki olyan félvezető detektor készitését, mely az eddigi tipusunál sugárrezisztensebb és sugárérzékenyebb, tehát amivel az eddig mérhető dózisintenzitás tartomány kiterjeszthető a kisebb dózisintenzitások felé. Számitásaink /l. 2.5 fejezet/ eredményeként kapott /11/ összefüggés alapján *p* tipusu sziliciumkristályból állitottunk elő vékony bázisu detektort.

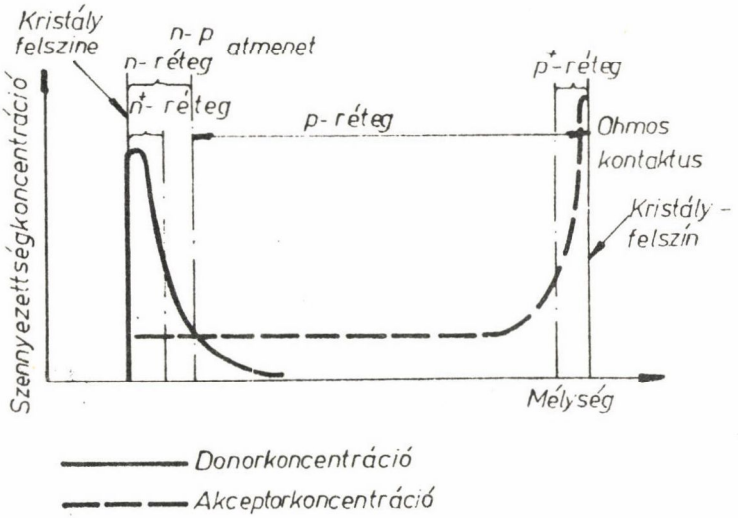
3.4. A p tipusu szilicium detektor előállitása és felépitése

A p tipusu /bórral doppolt/ Si alapanyagban a p-n átmenetet diffuzióval állitottuk elő. A diffuziónál a szennyező anyag behatolása jól szabályozható, igy a detektorok érzékenysége is egyenletes nagyobb sorozat előállitása esetén is[17].

A 800 Ωcm fajlagos ellenállásu eredetileg bórral doppolt sziliciumban foszfort /P/ diffundáltunk a felületen kiképzendő n réteg előállitására. Az erősen szennyezett n tipusu réteget n^+ tipusu rétegnek is szokásos nevezni. A p^+ réteg kialakitása bór /B/-diffzióval történik.

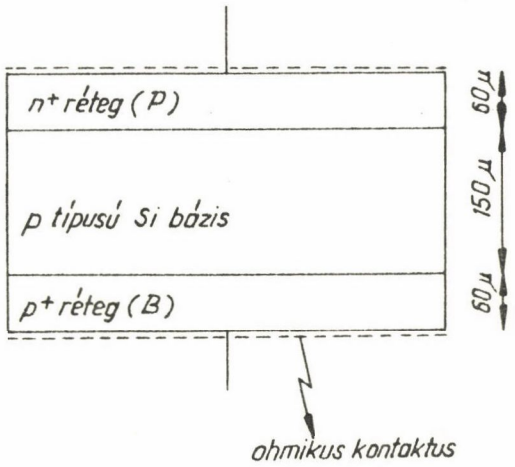
A 8. ábrán látható a diffzióval készitett detektorban a szennyeződés eloszlása.

A félvezető p-n átmeneteket ohmikus kontaktussal és kivezetésekkel szereltük fel. A 9. ábrán a detektor szerkezeti rajzát tüntettük fel.



8. ábra

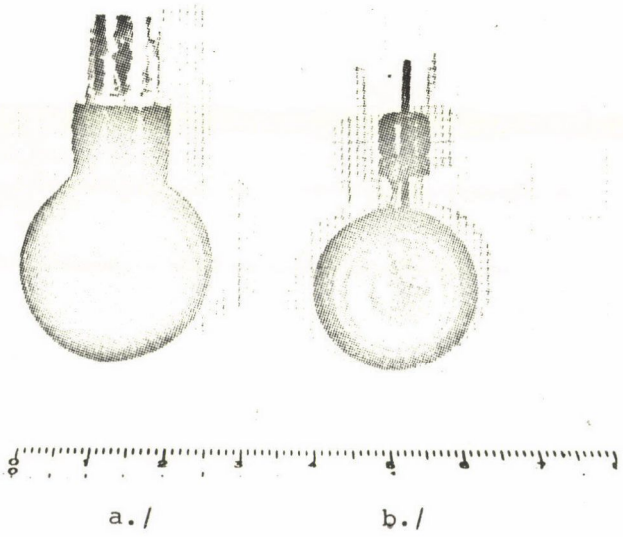
A szennyezőanyag eloszlása diffuziós technikával készitett p tipusu szilicium detektorban



9. ábra

Diffuziós Si(p) félvezető detektor szerkezeti rajza

A detektor vastagsága 0,27 mm; aktiv felülete: 2,0 cm^2. A detektort mügyantából készitett fényzáró tokkal szereltük fel, melyet a 10. ábrán mutatunk be.



10. ábra

A *p* tipusu detektor
a./ fényzár nélkül
b./ fényzárral

3.5. Az Si(*p*) detektor-feszültség-áram karakterisztikáinak vizsgálata

Az Si(*p*) tipusu félvezető detektort a 3.1. fejezetben már leirt körülmények között sugároztuk be és folyamatos üzemmódban /rövidzárban/ mértük a γ-sugárzás hatására fellépő áramot. A 11. ábrán látható az uj detektor nyitó és záróirányu karakterisztikái besugárzás előtt, valamint 40 MR és 80 MR dózissal való besugárzás után. A 3.2. fejezetben leirt elemzés alapján a nyitókarakterisztikából megállapitható, hogy

a./ a detektor γ-sugárrezisztenciát mutat;

b./ növekvő dózissal történt besugárzás hatására nem változik a kontakt potenciál és a kiüritett réteg vastagsága;

c./ nem változik a nyitókarakterisztika lineáris szakaszát jellemző névleges egyenáramu ellenállás;

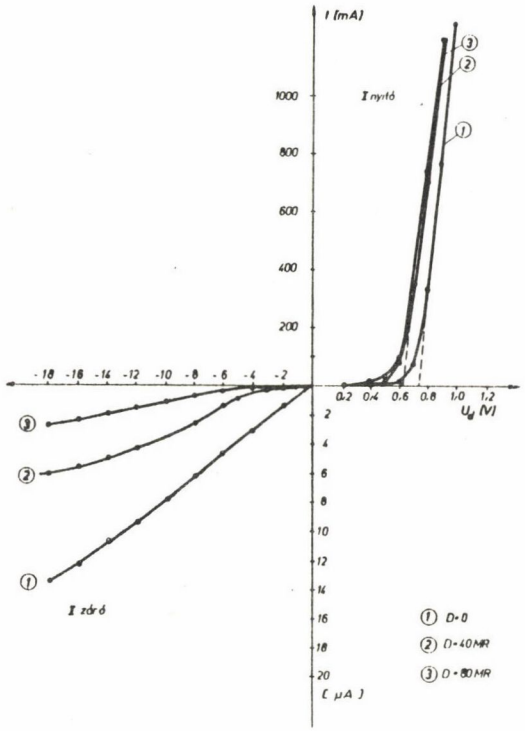
d./ a detektor küszöbfeszültsége besugárzás előtt közel 0,6 V és ez nem változik számottevően növekvő dózissal való besugárzás hatására.

3.6. Az *n* tipusu és *p* tipusu sugárdetektorok jellemzőinek összehasonlitása

A 12.-13. ábrákon mutatjuk be az *n* és *p* tipusu detektorok γ-sugárkárosodásának mértékét a dózis függvényében.

A 12. ábrából látható, hogy az eredetileg *p* tipusu sziliciumot a besugárzás hatására keletkező akceptorok még erősebben *p* tipusuvá teszik. Ennek

következtében a *p* tipusu szilicium detektorban a γ-sugárzás hatására generált rövidzárlati áram nagysága közel 20%-kal növekszik. A rövidzárlati áram növekedése 1 MR besugárzási dózis eléréséig tart, majd nagyon lassan csökken és eléri a besugárzás kezdetén mért értéket. A *p* tipusu szilicium detektor sugárérzékenység csökkenése 80 MR besugárzási dózis hatására 20%, mig az *n* tipusu detektor 80 MR dózis hatására teljesen "elöregedett": sugárérzékenysége 90%-kal csökkent.

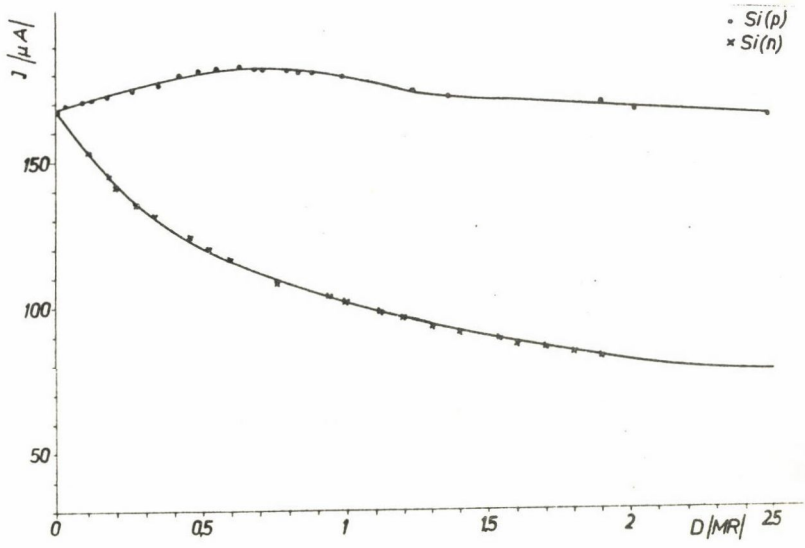


11. ábra

A *p* tipusu szilicium detektor feszültség-áram karakterisztikái 0, 40, 80 MR dózissal való besugárzás után

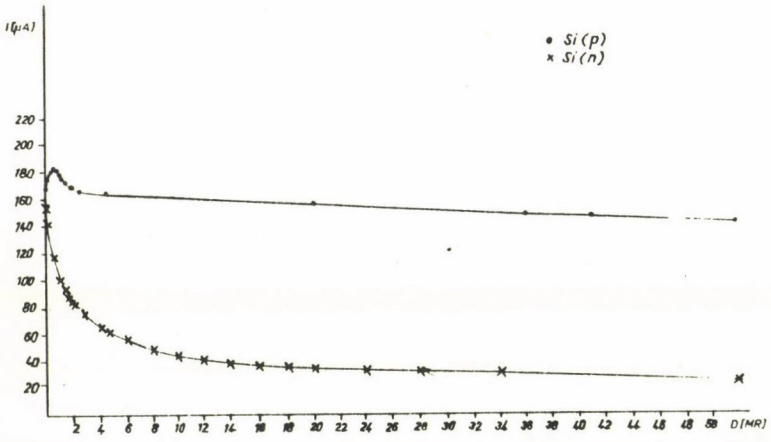
A *p* tipusu detektor sugárérzékenysége nyolcszor nagyobb az eddig használatos *n* tipusu szilicium detektorénál.

Az I. táblázatban foglaltuk össze, a régi és az uj szilicium detektor jellemzõit és az azokban besugárzás hatására bekövetkezõ paraméter változásokat.



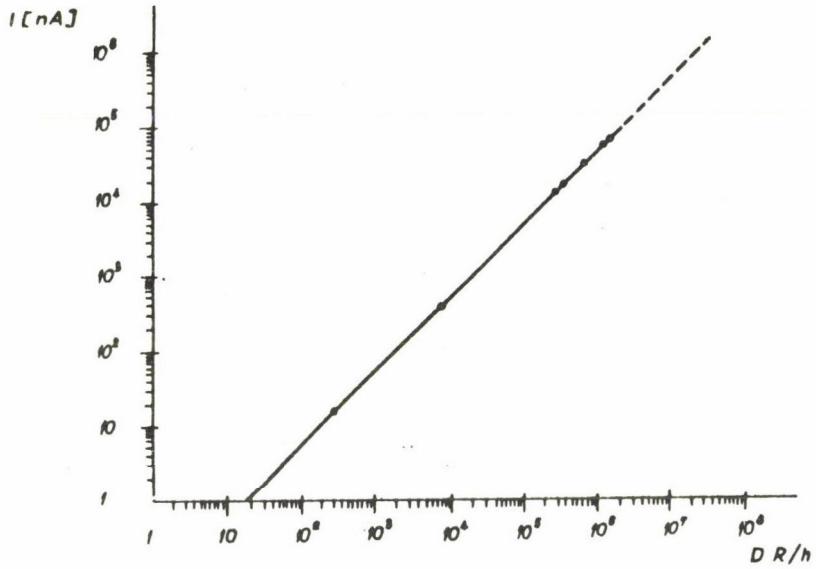
12. ábra

Si(*p*) és Si(*n*) tip. *p*-*n* átmenetek γ-sugárkárosodása



13. ábra

p-n átmenetek γ-sugárkárosodása



14. ábra

A *p* tipusu szilicium detektor hitelesitési görbéje a dózis függvényében

A két detektor érzékeny felülete közel egyenlő /2,0 cm^2, 2,2 cm^2/. Az *n* tipusu detektor bázisvastagsága 200 μ, mig a *p* tipusué 150 μ.

3.7. Eredmények kiértékelése

Miért sugárrezisztens a *p* tipusu detektor és mi okozza a vizsgált *n* tipusu szilicium detektor sugárérzékenység csökkenését /"öregedését"// besugárzás hatására?

A./ a γ-besugárzás megkezdésekor /kb. 50 kR dózis értékig/ az *n* és *p* tipusu detektorok μA/MR/h egységben megadott sugárérzékenységei közel egyenlők, /lásd az I. táblázatot/.

Ekkor detektorainkra érvényes a 2.5. fejezetben leirt

$$d_n \ll L_p, \quad d_p \ll L_n \qquad /20/$$

feltétel és igy a rövidrezárt *p-n* átmenetünkben /mind az *n* mind a *p* tipusu bázis esetén/ a /9/, illetve /10/ közelitő összefüggés adja a besugárzás hatására folyó áramot.

Vizsgáljuk meg, hogy detektorainkra mennyire teljesül a /20/ feltétel:

a./ A detektorkészitéshez felhasznált sziliciumban szobahőmérsékleten a diffuziós állandó[10] alapján lyukakra és elektronokra:

$$D_p = 12{,}4 \text{ cm}^2/\text{s} \qquad D_n = 35 \text{ cm}^2/\text{s} \qquad /21/$$

b./ a kisebbségi töltéshordozók élettartama:
Si(*n*) detektorunk esetén lyukakra: $\tau_p \sim 100$ μs
Si(*p*) detektorunk esetén elektronokra: $\tau_n \sim 100$ μs /22/

c./ A /21/ és /22/ adataink felhasználásával a /12/ összefüggés alapján a kisebbségi töltéshordozók úthossza:

$L_p = 350$ μ az Si(*n*) detektornál
$L_n = 600$ μ a Si(*p*) detektornál /23/

d./ a bázisvastagság detektorainknál /lásd 4. és 9. ábra/
$d_b = 200$ μ az Si(*n*) esetén
$d_b = 150$ μ az Si(*p*) esetén /24/

A /23/ és /24/ adatok felhasználásával a /20/ feltétel teljesül:
Si(*n*) detektorra $d_b = 200\ \mu < L_p = 350\ \mu$
Si(*p*) detektorra $d_b = 150\ \mu < L_n = 600\ \mu$ /25/

Tehát a γ-besugárzás megkezdésekor az Si (*n*) és Si (*p*) detektorokban fellépő rövidzárlati áram értéke független a diffuziós szabad uthossztól és a töltéshordozók élettartamától, azt csak a bázis vastagsága határozza meg.

B./ növekvő dózissal való besugárzás hatására az Si(*n*) tipusu detektor érzékenysége rohamosan csökken: a detektor "öregszik", mig a Si(*p*) detektor érzékenysége jelentősen nem változik.

I. táblázat

Az *n* és *p* tipusu detektorok jellemzõi és azok változása γ-besugárzás hatására

Detektor tipus	Sugárérzékenység μA/MR/h	Besug.dózis /MR/	Nyitókarakterisztika küszöbfesz. V_K[V]	Névleges egyenáramu /nyitó/ ellenállás [Ω]	Záróirányu ellenállás R_Z/[kΩ]
Si *(n)* ötvözött, /Sb, és Al szennyezõkkel/; bázisvastagság 200 μ; Si lapvastagság 0,340 mm; detektor érzékeny felülete: 2,0 cm^2	86,5	0	0,6	3,0	14,7 ~ 15
	13,0	40	1,1	4,4	25,6 ~ 26
	9,0	80	1,4	7,0	55,6 ~ 56
	11,7	120	2,2	14,0	14,3 ~ 14
Si *(p)* diffuziós, /B, illetve P szennyezõkkel/; bázisvastagság 150 μ; vastagság: 0,27 mm. Érzékeny felület: 2,2 cm^2	94,0	0	0,7	0,22	1200
	99,5	1			
	75	40	0,6	0,2	2300
	72	80	0,6	0,2	7500

a./ Az *n* tipusu sziliciumban besugárzás hatására keletkező rekombinációs centrumok egy nagyságrenddel lecsökkentik a töltéshordozók élettartamát. /Az *n* tipusu anyagban a kisebbségi töltéshordozók élettartamának csökkenését a következő összefüggés adja, protonokkal és elektronokkal való besugárzás hatására[18]:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_o} + \text{komb.dózis} \qquad /26/$$

ahol τ_o a töltéshordozó élettartama besugárzás előtt
τ a töltéshordozó élettartama besugárzás után/

A töltéshordozók élettartamának csökkenése a diffuziós szabad uthossz csökkenését eredményezi, aminek hatására a Si *(n)* detektorra az eddigi $d_b < L_p$ feltétel már nem lesz érvényes. E helyett a $d_b > L_p$ egyenlőtlenséget irhatjuk fel. Ez azt jelenti hogy, az *n* tipusu detektor rövidzárlati árama a töltéshordozók élettartamától és a diffuziós uthossztól függ a /19/ összefüggés alapján. Tehát a detektor besugárzás hatására "öregszik", nem sugárrezisztens /lásd az 5. és 12. ábrát/.

Meg kell emlitenünk, hogy az *n* tipusu anyag γ-sugárkárosodását döntően a töltéshordozók élettartamának csökkenése eredményezi, de emellett fellépnek γ-sugárzás hatására más egyéb effektusok is:
Pl. A besugárzás hatására keletkező akceptorok kompenzálják az eredeti donor szennyeződést, igy az anyag fokozatosan *p* tipusuvá válik, továbbá a kisebbségi töltéshordozók diffuziós állandója megváltozik.

b./ Az Si*(p)* tipusu detektor esetén növekvő besugárzási dózis hatására is érvényben van a $d_b < L_n$ feltétel, mert ennél a detektornál a kisebbségi töltéshordozók /elektronok/ diffuziós uthossza a bázisvastagság többszöröse.

Igy a Si*(p)* detektor rövidzárlati árama a töltéshordozók élettartamától független a /11/ és /17/ összefüggések alapján.

A rövidzárlati áram nagy dózisok hatására sem csökken számottevően /lásd 12. és 13. ábrák/ A *p* tipusu sziliciumban a sugárkárosodás kisebb, továbbá a besugárzás hatására keletkező akceptorok az anyagot még erősebben *p* tipusuvá teszik.

Célkitüzésünket megvalósitottuk és számitásaink helyesnek bizonyultak, mert vékonybázisu *p* tipusu szilicium detektor előállitásával sikerült sugárrezisztens detektort készitenünk.

3.8. A *p* tipusu szilicium detektor alkalmazása dózisintenzitás mérésére

A 80 MR dózissal besugárzott detektorokat egy évig tároltuk szobahőmérsékleten. Ezen időtartam alatt nem mutattak sugárérzékenység-változást. A γ-sugárzás hatására keletkezett rácshibák szobahőmérsékleten stabilnak mutatkoznak. 80 ^{o}C-on való 2 órás hőkezelés után sem változott a detektorok sugárérzékenysége.

A *p* tipusu detektorok sugárérzékenységei egyenlők, adott dózisintenzitásu helyen azonos áramértékeket adnak. Ez a tény előnyösen használható a méréstechnikában pl. detektorcsere vagy egy időben több detektorral való mérés esetén.

A detektort felhasználtuk dózisintenzitás mérésére cseppfolyós levegő hőmérsékletén is. A kvarc kémcsőben, levegőtől elzárt detektor hőmérsékletét réz-konstantán termoelemmel mértük. A kvarc kémcső cseppfolyós levegőt tartalmazó termoszba merült.

A γ-sugárzás hatására adódott áramértékek hányadosa a kétféle hőmérsékleten:

$$\frac{I_{22^{o}C}}{I_{-193^{o}C}} = 2,7$$

A Si *(p)* tipusu félvezető detektor 10^{2} - 10^{7} R/h γ-dózisintenzitás tartomány mérésére jól használható. A dózisintenzitás felső határát a K 120 000 tipusu ^{60}Co sugárforrás III. geometriáju forrás elrendezéséhez tartozó maximális dózisintenzitás, az alsó határt pedig az árammérő müszerünk érzékenysége szabta meg. A sugárzásdetektor lineáris 5 nagyságrendbeli dózisintenzitás tartományban /14. ábra /.

4 ÖSSZEFOGLALÁS

Számitásokat végeztünk rövidrezárt *p-n* átmenetü félvezető detektorok rövidzárási áramának meghatározására. Ezen eredményekből kiindulva *p* tipusu γ-sugárrezisztens szilicium detektort állitottunk elő.

Megvizsgáltuk és összehasonlitottuk az eddig használatos *n* tipusu és az uj *p* tipusu szilicium detektor γ-sugárkárosodását. Az Si*(p)* tipusu átmenet nyolcszor nagyobb sugárérzékenysége és sugárrezisztens tulajdonsága miatt alkalmasabb dózisintenzitás mérésére. Ezen uj detektorral 10^{2} R/h-10^{7} R/h besugárzási dózisintenzitások mérhetők - a 80 - 300 K^{o} hőmérsékleti tartományban.

IRODALOM

1. *T. Fényes, I. Mahunka,* Magyar Fizikai Folyóirat 21, 10 /1962/
2. *R.P. Paerker,* Solid State and Chemical Radiation Dosimetry in Medicine and Biology, Vienna, 3-7. okt. /1966/ 437
3. *R.P. Paerker, B.J. Morley,* Solid State and Chem. Rad. Dosimetry in Medicine Biology, Vienna, 3-7. okt. /1966/ 167
4. *Stringehang O.,* Atomkernenergie 17, 267 /1971/
5. *Hetényi, G., Dalzier, P.,* International Journal of Applied Radiation and Isotopes 22, 706 /1971/
6. *Pavlicsek I., Stenger V.,* Izotóptechnika 10, 460 /1971/
7. В.С. Вавилов, Действие излучений на полупроводники, Физматгиз /1963/
8. М. Чуничев, Б.У. Вавилов, Физика твердого тела 3, 17 /1961/
9. *AHF Muggleton,* Journal of Physics E. Sci. Instr. 5, /1972/ 390
10. *W.L. Brown,* IRE Transaction on Nuclear Science Ns-8, No.1. 1961. 1-10 p.
11. *Ch. Kittel,* Bevezetés a szilárdtestfizikába, Müszaki Könyvkiadó, Bp. /1966/
12. *K. Simonyi,* Elektronfizika, Tankönyvkiadó, Bp. /1965/
13. *D.S. Billington, J.H. Crawford,* Radiation Damage in Solids, Princeton NeW Jersey University Press /1961/
14. *S. Flügge,* Handbuch der Physik, Springer-Verlag Berlin 34, /1958/ 277
15. *J.O. Hirschfelder, M.H. Hall,* Phys. Rew. 73, 853 /1948/
16. *Hirling J., Stenger V.,* Energia és Automatika 22, 446 /1969/
17. *Deme S.,* Félvezető detektorok magsugárzás mérésére, Müszaki Könyvkiadó Bp. /1968/
18. А.М. Василев, А.П. Ландсман, Полипроводниковые фотопреобразователи, Физматгиз /1971/

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 328-335

A LÚD VÉRTÉRFOGATÁNAK MÉRÉSE RADIOIZOTÓPOS MÓDSZERREL

Horváth Z., Kardos Zs.
Állatorvostudományi Egyetem, Belgyógyászati Tanszék és Klinika, Budapest

Ludak vértérfogatának meghatározására az inaktiv Evans-kékkel, valamint a ^{59}Fe és ^{51}Cr jelzéssel történő mérések közül az utóbbi bizonyult a legalkalmasabbnak.

Определение объема крови гусей методом меченых атомов
Хорват, З., Кардош, Ж.

Объемы крови гусей были определены мечением нерадиоактивной лазурью Эванса, ^{59}Fe и ^{51}Cr, из которых последний метод оказался самым пригодным.

Determination of the Blood Volume of Geese by Means of Radioisotopes
Horváth, Z., Kardos, Zs.

The blood volume of geese has been determined by labelling with inactive Evans-blue, with ^{59}Fe and ^{51}Cr. The latest method proved the most convenient one.

A vérösszetevők kinetikai vizsgálatánál gyakran van szükség a vér térfogatos paramétereinek meghatározására. Az ilyen jellegü méréseknél nehézségek általában csak akkor jelentkeznek, ha a kisérleti állat tulzottan kicsiny testméretü, vagy plazmája valamilyen oknál fogva /pl. lipaemiás/ nem fotometrálható.

A ludakkal kapcsolatos kisérleteinkben vértérfogatméréseket kellett végeznünk. Az ezzel kapcsolatos tapasztalatainkat szeretnénk közölni.

Mint ismeretes, a vértérfogat meghatározásánál a következő főbb elvek érvényesülhetnek:

1. meghatározzuk a plazmatérfogatot, majd a hematokrit %-os értékének ismeretében ehhez hozzáadjuk a vörösvértest-térfogatot.

2. Közvetlenül mérjük a vörösvértest-térfogatot, és a hematokritérték ismeretében ehhez adjuk a plazmatérfogatot.

3. Külön-külön meghatározzuk a vörösvértest- és a plazmatérfogatot, és ennek összege lesz a vértérfogat.

4. A vér teljes volumenét közvetlenül mérjük, és ebből, a hematokrit % ismeretében, kiszámithatjuk a vörösvértest-, illetőleg a plazmatérfogatot.

A vér térfogatos meghatározásánál általában a higitásos /diluciós/ módszereket használjuk. Ha a plazma vagy a vörösvértesttömeg meghatározott részét megjelöljük és a szervezetbe visszajuttatjuk, a teljes elkeveredés után vett minta indikátor-koncentrációjának ismeretében a higulás mértéke és ebből a kivánt térfogat kiszámitható.

A jelzőanyag milyensége szerint inaktiv és izotópos módszereket különböztethetünk meg.

Az inaktiv /klasszikus/ meghatározásnál rendszerint nagy molekuláju, az egészségre ártalmatlan festékanyagokat alkalmazunk. A Vitál-vörös, a Geigikék, az Evans-kék általánosan használt indikátorok.

A radioizotópokból az ^{51}Cr, a ^{32}P, a ^{131}I és az ^{59}Fe a legáltalánosabban használt elem. A plazmatérfogat meghatározásánál a ^{131}I-ot, az ^{59}Fe- t és az ^{51}Cr-ot használják a leggyakrabban a humán és az állatorvosi kisérleti gyakorlatban. Ezek az elemek a szérumfehérjékhez kötődnek, és ezáltal biztositható a vérpályában való egyenletes eloszlásuk. A ^{131}I-dal jelzett humán szérumalbumin a kereskedelemben is kapható. Segitségével aránylag szerény technikai felkészültségü laboratóriumban is, viszonylag egyszerüen és pontosan meghatározható a plazmatérfogat. Ez a humánorvosi gyakorlatban igen elterjedt eljárás[9]. Az állatkisérletekben a jelzett emberi szérum felhasználása, a heterológ fehérjehatás miatt, nem megbizható. Jóval pontosabb eredmények várhatók, ha a kisérleti állat szérumából állitanak elő ^{131}I-dal jelzett készitményt. *Sztanyik és munkatársai*[11] ezen a módon igen pontosan meg tudják határozni a nyulak vértérfogatát. Az eljárás azonban hosszadalmasnak és munkaigényesnek látszik. *Burger és munkatársai*[4] ^{59}Fe izotóppal jelzett plazma segitségével virus hepatitisben beteg emberek vértérfogatát határozzák meg. Állatkisérletekben *Geszti*[5] használta jó eredménnyel ezt a módszert. A vörösvértestek ^{59}Fe-sal való jelzésével *Hahn és munkatársai*[6] dolgoztak ki in vivo jelölési módszert. A vértérfogat mérésének e módszere körülményes, emellett a vizsgálandó egyeden kivül a donor is ki van téve sugárterhelésnek. Manapság a vörösvértestek jelzésére a ^{32}P-ot és a 6 értékü ^{51}Cr izotópot használják mind általánosabban. *Burger*[3,4] és *Barta*[2] számoltak be ilyen módon embereken végzett vértérfogat-meghatározásokról. *Jenings és munkatársai*[7] és *Sztanyik*[11] emlős állatoknál alkalmazták a vörösvértestek ^{32}P-ral való jelzést. *Potsubay*[8] csirkék vértérfogatát mérte ugyancsak ezzel az eljárással.

A plazma- és a vörösvértest-térfogatot egymás mellett az un. kettős jelöléssel: a 6 és a 3 értékü ^{51}Cr-mal, valamint a ^{131}I-dal való jelzéssel lehet meghatározni[9]. A kettős jelölésü minták mérésére azonban a kisebb izotóplaboratóriumok müszerezettsége nem megfelelő.

ANYAG ÉS MÓDSZER

Vaskinetikai vizsgálatokat végeztünk 4-5 kg-os ludakkal. Ehhez a vértérfogat pontos ismeretére volt szükségünk, meghatározására azonban kidol-

gozott módszert erre az állatfajra a szakirodalomban nem találtunk, az általánosan használt módszereket pedig, ez állatfaj sajátosságainak ismeretében, fenntartás nélkül átvenni nem lehetett. A libavérrel való kisérletes munka ugyanis rendkivül nehézkes. A lud vére nemcsak, hogy nagy viszkozitásu, de a tömöritett vörösvértestmassza annyira összeragad, hogy nem is pipettázható. A nevelés előrehaladott szakaszában a plazma nagy zsirtartalmu /lipaemiás/, emiatt fotometrálásra alkalmatlan. A kidolgozandó módszernél törekednünk kellett arra is, hogy minél egyszerübb legyen, és több meghatározást együtt végezhessünk el.

Kisérleteinkben a lud vértérfogatának meghatározásánál három módszer eredményeit hasonlitottuk össze: először vizsgálatokat végeztünk ^{59}Fe-sal, majd ^{51}Cr-mal, illetve Evans-kékkel. Ezt követően a módszerekkel párhuzamos méréseket hajtottunk végre.

VÉRTÉRFOGAT MEGHATÁROZÁSA ^{59}Fe FELHASZNÁLÁSÁVAL

Mivel vaskinetikai vizsgálatainkban állandóan ^{59}Fe-sal dolgoztunk, kézenfekvőnek látszott az a megoldás, hogy a vértérfogatot is ennek segitségével határozzuk meg. Kisérleteinket ugy végeztük, hogy a libák szárnyalatti vénájából 10 ml alvadásában gátolt vért vettünk, centrifugáltuk és a plazmát nagy fajlagos aktivitásu vasoldattal /$Fe^{59}Cl_3$ fiziológiás oldatban/ hoztuk össze. Arra törekedtünk, hogy a felhasználandó plazma 3 ml-ében kb. 20 µCi aktivitás legyen. A vas, mint ismeretes, a plazma transzferrinjéhez kötődik, de hogy ez még biztosabb legyen, a vizsgálati anyagot 30°C-on 10 percig inkubáltuk. A pontosan kimért 3 ml nyomjelzett anyagot a nyaki vénába injiciáltuk. A fecskendőt 2 ml fiziológiás konyhasóoldattal utánamostuk. A visszamaradt aktivitás nagyságát ellenőriztük; nem volt számottevő. Az ismert mennyiségü maradék plazmából standard oldatot készitettünk olyan higitással, hogy fajlagos aktivitása nagyságrendben a plazma várható aktivitásával egyezzék meg. Kisérleteinkben relativ mennyiségekkel számoltunk, amelyeket a beütésszám alapján határoztunk meg. A jelzett plazma beadását követő 30., 60. és 120. percben vért vettünk, centrifugáltuk és a plazma 1-1 ml-ét az aktivitásmérésekhez kipipettáztuk. Referens standard oldatunk ugyancsak 1 ml volt. A minták aktivitásának mérését üreges NaI/Tl/ kristályos szcintillációs mérőfejjel végeztük, amelyhez NK-108 tipusu energiaszelektiv számlálót kapcsoltunk.

A standard aktivitásából, valamint a higitás figyelembevételével és a reinjiciált plazma beütésszámának ismeretében kiszámitottuk a beadott teljes dózist. A vérminták aktivitásértékeit az idő függvényében, szemilogaritmikus papiron ábrázoltuk. Az eredményeket a T_o időpontra extrapoláltuk, és az ehhez tartozó A_o aktivitásokat használtuk fel a plazmatérfogat kiszámitásánál. A következő képleteket használtuk:

$$PT = \frac{A_1}{A_o}$$

ahol PT - a plazmatérfogat /ml-ben/,
A_1 - a befecskendezett nyomjelzett anyag beütésszáma /cpm-ben/,
A_o - a plazma beütésszáma a T_o időben /cpm/ml-ben/

A teljes vértérfogatot ugy számitottuk ki, hogy a plazmatérfogat ml-ben kifejezett értékeihez a vörösvértesttömeg ml-ben kifejezett értékét hozzáadtuk. A vörösvértest-térfogatot a következő képlettel határoztuk meg:

$$VT = \frac{PT \cdot Ht}{100 - Ht}$$

ahol VT - vörösvértest-térfogat
PT - plazmatérfogat /ml-ben/
Ht - hematokrit /%-ban/
A vértérfogatot a plazma- és a vörösvértest-térfogat összege adja.

VÉRTÉRFOGAT MEGHATÁROZÁSA ^{51}Cr IZOTÓPPAL

A teljes vér mennyiségét ^{51}Cr segitségével mértük. Mint ismeretes, a hatértékü Cr-ot a vörösvérsejtek adszorbeálják, mig a háromvegyértéküt a plazma köti meg. A meghatározást a következő módon végeztük.

5 ml-nyi alvadásában gátolt vért vettünk, amihez kb. 20 µCi aktivitásu /nagy fajlagos aktivitásu/ $Na_2{}^{51}CrO_4$ oldatot adtunk. A Cr beépülését 5 ml ACD-oldat hozzáadásával /1,65 g Na-citrát, 0,60 g citromsav, 1,84 g szőlőcukor, 75 ml-re oldva deszt.vizzel/ és 45 percig tartó inkubálással /38°C termosztátban/ növeltük. Az inkubátorból kivéve a Cr adszorpcióját 100 mg aszkorbinsav hozzáadásával megszüntettük. Ezzel a hatértékü Cr-ot háromértéküvé alakitottuk, és igy a sejtekbe való beépülését lehetetlenné tettük. A maradék háromértékü Cr most már csak a plazmafehérjékhez kötődhetett. Ennek elősegitésére a mintát még további 10 percig inkubáltuk 30 °C-on.

Az igy jelzett vérből 5 ml-t injiciáltunk az állat nyaki vénájába. Az egész mennyiség pontos beadását az előbbi módszernél már ismertetett módon biztositottuk. A minta maradékából standard oldatot készitettünk.

Az állatok szárnyalatti vénájából 1 óra elteltével vért vettünk és ebből 1 ml-t mértünk be az aktivitásméréshez. Az izotópos mérés után meghatároztuk a hematokritértéket is /Janetzky mikrohematokrit-centrifuga segitségével/. Ismerve a bevitt teljes mennyiség beütésszámát, a vér teljes térfogatát a következő módon számoltunk:

$$W = \frac{A_1}{A}$$

ahol W - teljes vértérfogat /ml-ben/
A_1 - bevitt nyomjelzett anyag /cpm-ben/
A - a vér fajlagos aktivitása /cpm/ml-ben/.

A plazmatérfogat kiszámitása:

$$PT = \frac{W\ /100\text{-}Ht/}{100}$$

ahol PT - plazmatérfogat /ml-ben/
Ht - hematokrit %

A vörösvértest-térfogat a vér teljes térfogatának és a plazma térfogatának különbsége.

VÉRTÉRFOGAT MEGHATÁROZÁSA EVANS-KÉKKEL

Ennél az eljárásnál nagyon kell ügyelni arra, hogy a plazma teljesen tiszta, átlátszó legyen, mert a legkisebb opaleszcencia is meghamisitja az extinkció értékét, és ezzel az eredményeket. A plazmát ezért minden esetben éterrel kirázva zsirtalanitottuk.

A kisérleti állatokból heparinos vért vettünk, centrifugáltuk, majd a plazmát a vakpróbához eltettük. Ezután az egyik szárnyalatti vénába 0,5 ml 0,5 %-os Evans-kék oldatot fecskendeztünk be. A fecskendőt vérrel többször átöblitettük. A mintákat az ellenoldali szárnyvénából vettük, a beadást követő 10., 20., és 30. percekben. A mintákat centrifugáltuk, és a leszivott plazma extinkcióját a vakkal szemben mértük. A használt festékoldat 0,5 ml-ét 250 ml-re higitottuk, és standard oldatként használtuk. A mérést Unicam Sp 500-as tipusu sektrofotométeren 500 nm hullámhosszon végeztük, ahol a vakkal szembeni extinkciókat 1 cm-es küvettában állapitottuk meg.

A kapott méréseket az idő függvényében, szemilogaritmikus papiron ábrázoltuk és azt egyenest T_o időre extrapoláltuk. Az ehhez tartozó extincióval számoltuk a plazmatérfogatot:

$$PT = 250.\frac{E_o}{E_{st}}$$

ahol PT - plazmatérfogat ml-ben;
E_o - a minta T_o időhöz tartozó extinkciója;
E_{st} - a standard extinkciója.

Az extrapolációt azért tartottuk szükségesnak, mert bár lassan, de ez a festék a vérből kiürül.

A hematokritérték ismeretében a vörösvértest-térfogatot az ^{59}Fe-nál ismertetett módon számitottuk.

AZ EREDMÉNYEK ÉRTÉKELÉSE

Kisérleteinkben először 8 állaton ^{59}Fe indikációval végeztünk vértérfogat-meghatározást. Az 1. táblázatból megállapitható az állatok élősulya, a vér hematokritértéke, a plazmatérfogat és a számitott teljes vértérfogat. A táblázat utolsó oszlopában a testsulykilogramra eső vérmennyiséget tüntettük fel.

1. táblázat

Ludak vértérfogatának meghatározása ^{59}Fe indikációval

az állat		hema-	plazmatér-	összes	vér/test-
sorszáma	sulya /g/	tokrit /%/	fogat /ml/	vértf. /ml/	suly /%/
1.	4750	32	300	441	9,3
2.	4800	35	329	506	10,5
3.	4500	46	283	525	11,7
4.	5000	48	219	420	8,4
5.	4350	48	164	216	7,3
6.	5250	42	210	362	6,9
7.	4000	40	208	347	8,7
8.	4750	47	223	420	8,8

Az eredményekből kolvasható, hogy a közel azonos sulyu libák vértérfogata 350-500 ml között ingadozott; ez a testsuly 7-9 %-ának felelt meg.

10 állatnál végeztük el ^{51}Cr jelzéssel a vértérfogat meghatározását. Ennek a méréssorozatnak eredményeit a 2. táblázatban mutatjuk be.

2. táblázat

Ludak vértérfogatának meghatározása ^{51}Cr indikációval

az állat		hema-	Összes	plazmatér-	vér/test-
sorszáma	sulya /g/	tokrit /%/	vértf. /ml/	fogat /ml/	suly /%/
1.	4250	40	564	238	13,2
2.	4750	41	526	311	11,1
3.	4250	40	630	380	14,8
4.	3750	44	525	294	14,0
5.	4000	52	528	253	13,2
6.	4500	52	630	302	14,0
7.	3500	45	448	246	12,8
8.	4750	47	594	315	12,5
9.	5250	42	585	339	11,2
10.	4000	40	550	330	13,8

Ebben a vizsgálatban mért adatok közvetlenül a teljes vérmennyiséget adják. Az ^{51}Cr indikációval végzett vizsgálatok nagyobb vértérfogat-értékeket adtak, mint amekkorákat az ^{59}Fe jelzéssel kaptunk. Az értékek 550-600 ml között voltak, ami testsulyra átszámitva kb. 12 %-ot jelent.

A kétféle izotópos módszer tehát eltérő eredményt adott. Annak eldöntésére, hogy vajon melyik szolgáltathat helyes eredményeket, hat állatnál három módszert egyszerre alkalmaztuk. Az adatokat a 3. táblázatban összegeztük.

3. táblázat

A ludak vértérfogatának meghatározása párhuzamosan 3 módszerrel

Az állat		Evans-kékkel		^{51}Cr indikációval		^{59}Fe indikációval	
sorszáma	sulya /g/	összes vértérfogat /ml/	vér/testsuly /%/	összes vértérfogat /ml/	vér/testsuly /%/	összes vértérfogat /ml/	vér/testsuly /%/
1.	4750	492	10,4	594	12,5	420	8,8
2.	5250	587	11,2	585	11,2	362	6,9
3.	4000	545	13,7	550	13,8	347	8,7
4.	4500	562	12,5	565	12,6	417	9,3
5.	4250	550	13,1	549	12,9	378	8,9
6.	4500	582	14,9	585	13,0	450	10,0

A táblázatból kitünik, hogy a klasszikus inaktiv módszer és az ^{59}Cr izotópos meghatározás, egy állat kivételével, közel azonos eredményeket adott. Az ^{59}Fe-as vizsgálatok eredményei ezektől lényegesen eltértek.

Kisérletes adataink alapján elmondhatjuk, hogy ludak vértérfogatának meghatározására a ^{51}Cr indikációs módszer igen megfelelő. Az igy kapott eredmények azt mutatják, hogy a ludak vértérfogata a testsuly 12 - 13 %-a körüli érték. Ez az irodalomban kacsákra[10] és csirkékre[8] vonatkozó vértérfogat-adatok közé esik.

Az Evans-kék festékkel végzett meghatározás is jó eredményeket szolgáltat, alkalmazni azonban csak akkor ajánlatos, ha nincs mód izotóphigitásos módszerre. A festékdiluciós meghatározás ugyanis lényegesen több előkészitést igényel, és a vér zsirtartalmától függ, hogy ha egyáltalán elvégezhető, milyen pontossággal. Ez a probléma ^{51}Cr jelzéssel történő vizsgálatoknál nem jelentkezik.

IRODALOM

1. *Bálint P.*, Klinikai diagnosztika, Medicina Kiadó, Budapest, 1962.
2. *Bartha I.*, Orvosképzés 14 /1966/ 81
3. *Burger T., Keszthelyi B., Peer J.*, Orv. Hetilap 105 /1964/ 1562

4. *Burger, T., Barna K., Keszthelyi B.*, Orv. Hetilap 107 /1966/ 396
5. *Geszti O., Sztanyik L., Mándi E.*, Honvédorvos 16 /1964/ 42
6. *Hahn, P.F., Ross, J.J., Bale, W.F., Balfour, W.M.*, J. Exp. Med. 75 /1942/ 221
7. *Jennings, F.W., Lauder, I.M, Mulligen, W., Urquart, G.M.*, The Vet. Rec. 66 /1954/ 166
8. *Potsubay J., Duduk V., Vincze L.*, M. Állatorv. L. 22 /1967/ 64
9. *Somogyi Gy., Policzer, M., Nagy J.*, Radioaktiv izotópok diagnosztikai alkalmazása, Medicina Kiadó, Budapest, 1968
10. *Sturkie, P.D.*, Avian Physiology, Ithaca, New York, 1965
11. *Szatnyik L., Geszti O., Mándi E.*, Honvédorvos 15 /1963/ 234

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/ 336-345

A CISZTEIN SEJTANYAGCSERÉRE KIFEJTETT HATÁSAINAK SZEREPE A SUGÁRREZISZTENCIA FOKOZÓDÁSBAN

I. E.COLI SEJTEKEN KIFEJTETT HATÁS*

Hernádi F.
Debreceni Orvostudományi Egyetem, Gyógyszertani Intézet

E.coli törzsekben a cisztein számos anyagcsere-változást okozott. A változások kapcsolatba hozhatók metabolikus sugárvédő hatással.

Влияние цистеина на обмен веществ клеток и роль этого влияния в повышении радиационной стойкости
I. Влияние на клетки E.coli
Хернади, Ф.

Цистеин вызвал ряд изменений в обмене веществ семейств E.coli. Связь между этими изменениями и его метаболическим радиозащитным действием весьма вероятна.

The Role of the Metabolic Effects of Cysteine in the Enhancement of Cellular Radioresistance
I. Effects on E.coli cells
Hernádi, F.

Cysteine has caused several changes in the metabolism of strains of E.coli. These changes are very likely to be connected with its metabolic radioresistance effect.

A cisztein-ciszteamin csoportba tartozó vegyületek mind makro-, mind mikroorganizmusokon a leghatásosabb sugárvédők közé tartoznak. Megelőző munkáinkban megállapitottuk, hogy sugárvédő hatásuk két komponensre bontható:

a/ fiziko-kémiai és

b/ metabolikus komponensekre.

A jelen közleményben bemutatott munkákban az utóbbi, a metabolikus komponens részletes vizsgálatát tüztük ki célul.

A megoldásra váró konkrét feladatok a következők voltak:

---

*A Magyar Tudományos Akadémián 1972 december 12-én tartott előadás

1. módszer kidolgozása, amelynek segitségével a metabolikus sugárvédő hatás a fiziko-kémiaitól függetlenül tanulmányozható.

2. A kidolgozott módszer segitségével a cisztein metabolikus sugárvédő hatása kialakulásának, a hatás mértékének és a hatást befolyásoló tényezőknek a tanulmányozása.

3. A cisztein E.coli sejtekre kifejtett anyagcsere-hatásainak vizsgálata azzal a céllal, hogy összefüggést keressünk az okozott anyagcsere változások és a sugárrezisztensebb sejtfiziológiai állapot között, azaz a cisztein-anyagcsere és metabolikus sugárvédő hatása támadáspontjának /támadáspontjainak/ kutatása.

4. Annak a kérdésnek a megválaszolása, hogy a cisztein által a baktériumsejtekben létrehozott rezisztensebb fiziológiai állapot a sugárzás indukálta primer károsodások számának csökkenéséből, vagy a sejtek repair kapacitásának jobb kihasználásából adódik-e.

Az E.coli törzsek közül az: E.coli B, E.coli B_{s-2}, E.coli B/r, E.coli $15T^-$, E.coli TAU^- és E.coli K12 /AB 2497/ törzseket alkalmaztuk, a kémiai sugárvédők közül pedig a ciszteint választottuk a fenti hatásmódtipus elemzésére.

KISÉRLETEK ÉS MEGBESZÉLÉS

ad 1. Kisérleteink első részében a megfelelő modellrendszert dolgoztuk ki. Rendszerünkben a metabolikus sugárvédő hatást ugy vizsgáltuk, hogy a sejteket bizonyos ideig /1-60 perc/ ciszteinnel kezeltük, majd eltávolitottuk a közegből, és a sejteket ciszteinmentes foszfátpufferben sugaraztuk be. Igy, ha nem is szüntethettük meg teljesen, jelentős mértékben csökkentettük a cisztein fiziko-kémiai sugárvédő hatását, s tanulmányozhatóvá vált a sejtek sugárérzékenységének az anyagcsere változások folytán létrejövő csökkenése.

ad 2. A módszerrel az általunk alkalmazott összes E.coli törzsön kimutattuk a cisztein metabolikus sugárvédő hatásának létezését. A hatás mértéke a következő tényezőktől függött:

A. Az alkalmazott cisztein koncentráció.

A cisztein már 1 mM-os koncentrációban mérhető sugárvédő hatást fejtett ki. 1-10 mM között a hatás koncentrációfüggőnek bizonyult, majd 10 mM felett nem tapasztaltunk további hatásfokozódást. A tulélő görbék szigmoid tipusuak voltak, mind kisebb, mind nagyobb cisztein koncentrációnál.

B. Az inkubációs idő.

Az elérhető maximális védettség adott koncentrációju /2 mM/ cisztein bevitelét követő 30. percben alakult ki. Megközelitően ugyanannyi inkubációs

idő volt szükséges ahhoz, hogy ciszteinmentes, friss tápközegben a mikroorganizmusok visszanyerjék sugárérzékenységüket.

C. Az inkubációs hőmérséklet.

A cisztein csak a tenyészet növekedését biztositó hőmérsékleten fejtett ki metabolikus sugárvédő hatást.

D. A baktériumok növekedési ciklusa.

A sejtek növekedési ciklusa nemcsak sugárérzékenységüket, hanem sugárvédhetőségüket is megszabta. A stacioner fázisban lévő sejteknél elmaradt a cisztein metabolikus sugárvédő hatása.

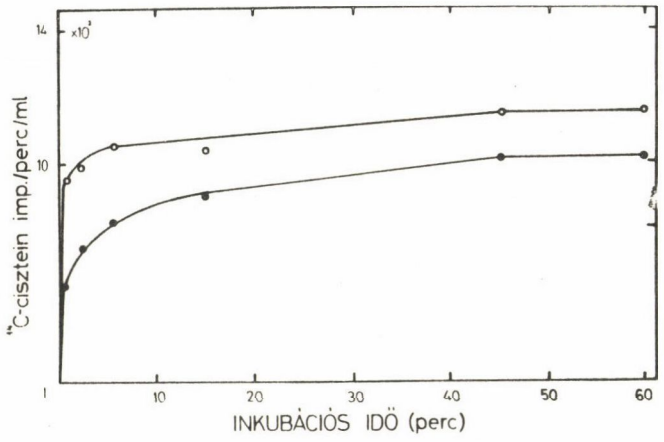
E. Az alkalmazott tápközeg összetétele.

Adott koncentrációju /2 mM/ cisztein metabolikus sugárvédő hatása ásványi sókat tartalmazó szintetikus tápközegben nyilvánult meg elsősorban. A fenti tápközegnek bouillonnal, kazein hidrolizátummal való gazdagitása esetén nem jutott érvényre e hatás.

ad 3. A továbbiakban a cisztein hatására bekövetkező sejtanyag-csereváltozásokat vizsgáltuk, ezen belül elsőnek a cisztein sejttenyészet-növekedést és sejtosztódást gátló hatását. Megállapitottuk, hogy a sejtosztódást gátló hatás és az előbbiekben bemutatott sugárvédő hatás között szoros kapcsolat van.

E két hatásért felelős receptorokat kutatva a cisztein E.coli sejtekbe való bejutását, intracelluláris sorsát ^{35}S-nel, illetve ^{14}C-nel jelzett ciszteinnel, továbbá SH csoportok mérésével követtük.

Kimutattuk, hogy a cisztein igen gyorsan bejut a sejtekbe, különösen a logaritmikus fázisu E.coli baktériumokba, és bennük kb. 5 perc alatt szaturációs szintet ér el. Mivel nem volt különbség az ^{35}S-és ^{14}C-felvétel ütemében, csak a ^{14}C-jelzett cisztein beépülését ábrázoltuk /1. ábra/.

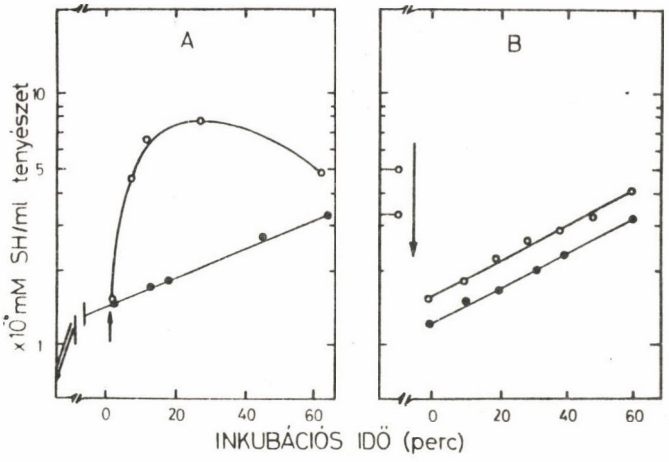


1. ábra

Logaritmikus fázisu E.coli B sejtek ^{14}C-jelzett cisztein-felvétele

Logaritmikus fázisu tenyészetekhez 2 mM ciszteint adtunk, amelynek radioaktiv koncentrációja 0,1 µCi/ml volt. Időnként mintákat vettünk, és meghatároztuk a sejtekbe /O/ és a hideg TCA-ban oldhatatlan frakcióba /●/ beépült radioaktivitást.

A 2. ábra az E.coli 15T⁻ sejtek hideg savoldható SH tartalmának változását ábrázolja cisztein jelenlétében /A/ és eltávolitása után /B/.



2. ábra

E.coli 15⁻ sejtek hideg savoldható SH-tartalmának változása cisztein jelenlétében és eltávolitása után

Logaritmikus fázisu sejtekhez 2 mM ciszteint adtunk /nyillal jelölve/ és az inkubációt a maximális SH-szint eléréséig folytattuk. Ekkor a sejtek egyik részét tovább inkubáltuk ciszteinben 60 percig /A/, a másik részét centrifugáltuk /nyillal jelölve/, mostuk, és 37 C°-ra előmelegitett, ciszteinmentes tápközegben reszuszpendáltuk /B/. Ezután mértük az SH-tartalom változását.

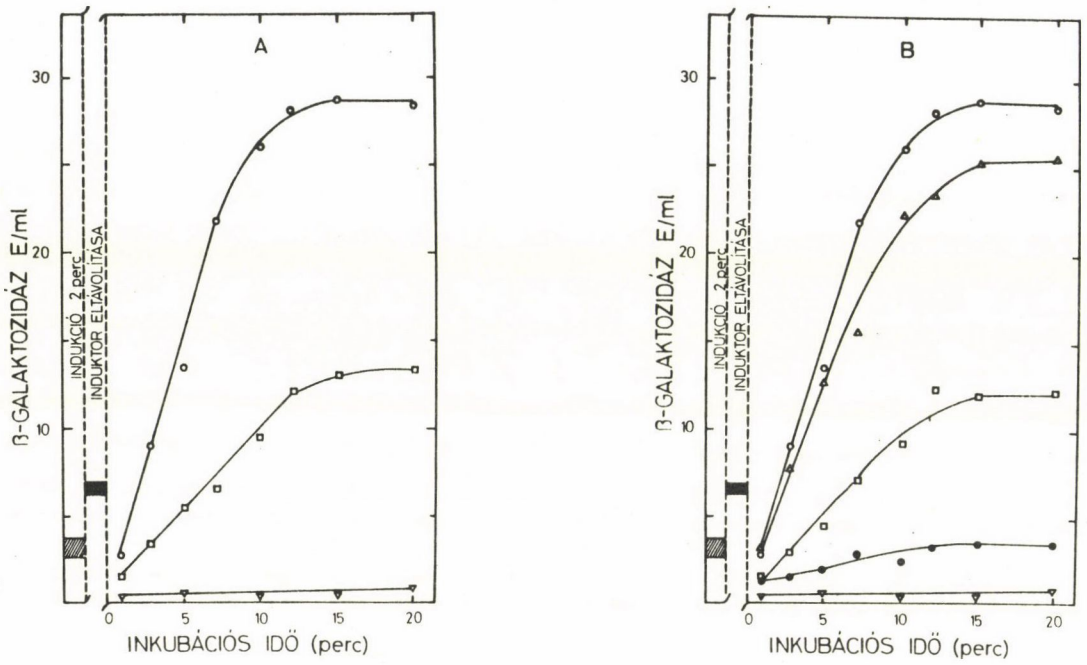
●: kontroll
O: ciszteinnel kezelt

2 mM cisztein hatására mintegy négyszeresre nőtt a hideg savoldható SH szint a kezeletlen sejtek SH tartalmához viszonyitva, majd ciszteinmentes tápközegben való ujratenyésztésnél 1 percen belül az eredeti szintre csökkent.

A cisztein sejten belüli megoszlását, a szabad és kötött cisztein arányát sejtfrakciókra való bontással határoztuk meg. A felvett cisztein legnagyobb mennyiségét /illetve a legnagyobb aktivitási értékét/ a hideg savoldható frakcióban találtuk.

A következő kisérletsorozatban a cisztein sejtosztódásgátló hatásának biokémiai hátterét vizsgáltuk. Megállapitottuk, hogy a cisztein E.coli tenyészetekhez való hozzáadásakor az RNS- és fehérjeszintézis azonnal leállt, a DNS-szintézis csak kb. 30 perc mulva. A cisztein hatására tehát a makromolekulák szintézise kiegyensulyozatlanná vált /a DNS-szintézis egy meghatározott ideig RNS- és fehérjeszintézis nélkül folyt tovább/, amelynek eredményeképpen a tenyészetben a DNS/RNS arány 0,18-ról 0,29-re növekedett. A kisérletekből arra következtettünk, hogy a cisztein a fehérje-, illetve az RNS→szintézis gátlásán keresztül állitotta le az E.coli tenyészetek növekedését. Ezért a továbbiakban a fehérje- és RNS-szintézisben bekövetkező változásokat analizáltuk.

A 3. ábrán a ciszteinnek az E.coli B sejtek β-galaktozidáz indukciójára /mRNS szintézis/ és az enzimszintézisre /transzláció/ kifejtett hatása látható. Az ábra "A" részében ismert fehérjeszintézis-gátló, a kloramfenikol, "B" részében a cisztein hatását ábrázoltuk.



3. ábra

Cisztein hatása az E.coli B sejtek β-galaktozidáz indukációjára /mRNS szintézis/ és az enzimszintézisre /transzláció/.

Logaritmikus fázis közepén lévő sejteket 30°C-on 2 percig inkubáltuk induktor /TMG/ jelenlétében, majd azt eltávolitva a sejteket friss, induktormentes tápközegben reszuszpendáltuk, és tovább inkubáltuk 30°C-on. A sejteket vagy az induktor adása előtt, vagy az induktor eltávolitása után kezeltük a gátló anyagokkal. Adott időpontban mintákat vettünk β-galaktozidáz-aktivitás meghatározására.

"A" rész:

o : kontroll
□ : 50 µg/ml klóramfenikol az indukció alatt
Δ : 50 µg/ml klóramfenikol az induktor eltávolitása után

"B" rész:

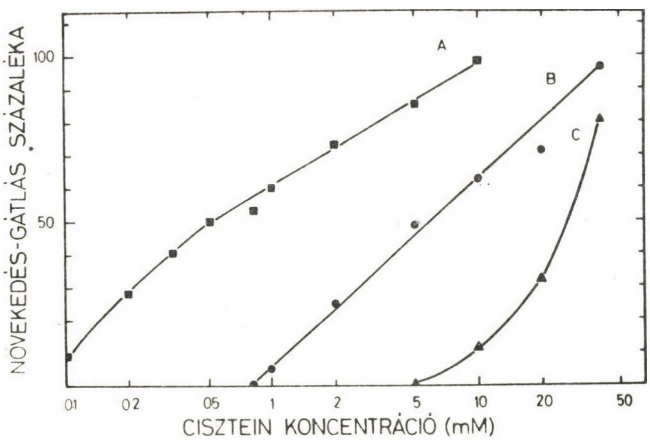
□ : 20 mM cisztein az indukció alatt
● : 2 mM cisztein az induktor eltávolitása után
▽ : 20 mM cisztein az induktor eltávolitása után
Δ : 2 mM cisztein + 50-50 µg/ml leucin, izoleucin, treonin és valin az induktor eltávolitás után
o : kontroll.

Ha az 50 µg/ml klóramfenikolt az indukció alatt adtuk a sejtekhez, kb. 50%-os gátló hatást fejtett ki; ha az induktor eltávolitása után alkalmaztuk,

azaz az enzimszintézis fázisa alatt, 100%-os gátlást mutatott. Megállapitható volt, hogy a cisztein is elsősorban a transzláció folyamatát gátolja. Az indukciókor adott 20 mM cisztein kb. 50%-os gátló hatást fejtett ki a transzkripció folyamatára, mig a transzlációt már 2 mM koncentrációban 87,5%-osan, 20 mM koncentrációban pedig 100%-osan gátolta. Ez a gátló hatás teljesen felfüggeszthető volt 50-50 µg/ml /> 0,5-0,5 mM/ leucin, izoleucin, treonin és valin keverékének egyidejü adásával.

A továbbiakban e keverékről kiderült, hogy a ciszteinnek mind a tenyészetnövekedést gátló, mind metabólikus sugárvédő hatását felfüggeszti. Ezek a megfigyelések vetették fel annak a lehetőségét, hogy a cisztein a négy aminosav bioszintézisének gátlásán keresztül fejti ki tenyészetnövekedést gátló hatását. Ezen elképzelést alátámasztja az a tény, hogy a fenti négy aminosav bioszintézisében résztvevő enzimek közül a homoszerin-dehidrogenáz /HSDH/ és a hidroxi-ecetsav-szintetáz /AHAS/ aktivitását in vitro körülmények között a cisztein hasonló mértékben gátolja, mint a baktériumsejtek növekedését.

Ennek alapján feltételeztük, hogy a cisztein RNS-szintézist gátló hatása a "rel" génen keresztül érvényesül, s ezt rel⁻ törzseken kivántuk igazolni. Ezek a kisérletek vezettek arra a következtetésre, hogy a cisztein növekedést gátló hatása koncentrációtól függő, összetett hatás. Ez jól látható a 4. ábrából.



4. ábra

A cisztein elsődleges, másodlagos és harmadlagos hatásai

Roberts C tápközegben növő, logaritmikus fázis közepén lévő tenyészethez adtuk a hatóanyagokat.

"A" görbe /■/ = elsődleges gátló hatás /cisztein egymagában/;
"B" görbe /●/ = másodlagos hatás /cisztein + leu-ileu-treo-val/;
"C" görbe /▲/ = harmadlagos hatás /cisztein + leu-ileu-treo-val + ferri ionok/.

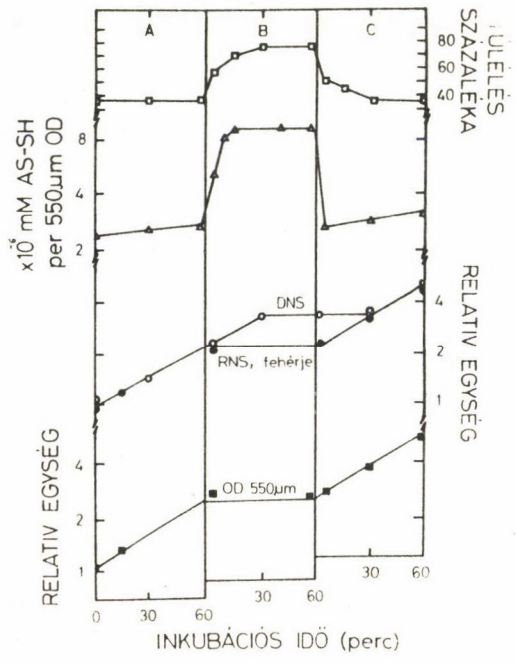
A tenyészetnövekedés gátlásában háromféle hatást különböztetünk meg.

Az *elsődleges hatás*, melynek ismérvei: kisebb cisztein-koncentrációnál is érvényre jut /a hatás 0,2 mM-nál kezdődik és 10 mM-nál csaknem teljes/, és akkor érvényesül, ha az E.coli sejteket kizárólag ásványi sókat és glükózt tartalmazó tápközegben tenyésztjük. Antagonizálható leucin, izoleucin, treonin és valin aminosavak keverékével, igen kis /50-50 µg/ml/ koncentrációban. A β-merkapto-etilamınnak /MEA/ nincs meg ez a hatása. Valószínüleg ugy jön létre, hogy a cisztein gátolja a homoszerin-dehidrogenáz és hidroxi-ecetsav-szintetáz enzimek müködését, s ezen keresztül a leucin, izoleucin, treonin és valin bioszintézisét.

Másodlagos hatást akkor tapasztalunk, amikor az E.coli sejtekben az elsődleges hatást leucin, izoleucin, treonin és valin keverékével felfüggesztjük. Csak 2 mM-nál nagyobb koncentrációju cisztein jelenlétében észlelhető, ferrionokkal antagonizálható, és MEA-val is kiváltható. Valószínüleg ugy jön létre, hogy a membránhoz kötött, oxidációs folyamatokban résztvevő enzimek müködése gátlódik, és ezen keresztül energiahiány keletkezik.

Harmadlagos hatásnak - összefoglaló néven - a 10 mM-nál nagyobb koncentrációban alkalmazott cisztein eddig ismeretlen természetü, aspecifikus hatásait nevezzük.

Az 5. ábra a cisztein által az E.coli $15T^-$ sejtekben kiváltott sugárérzékenységi és anyagcsere-változások időbeli összefüggését mutatja.



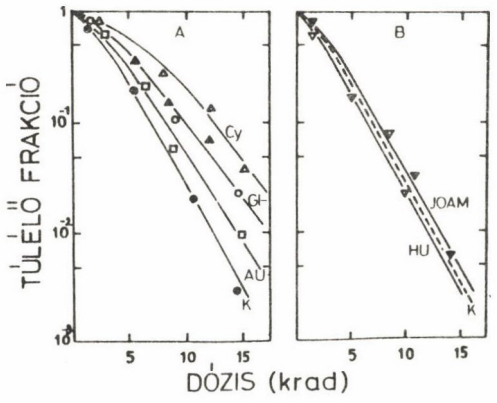
5. ábra

A cisztein által E.coli $15T^-$ sejteken kiváltott sugárérzékenységi és anyagcsereváltozások időbeli összefüggésének sémás ábrázolása

□ : 3,2 kraddal történő besugárzás utáni tulélés
Δ : savoldható SH-tartalom
O : DNS-szintézis
● : RNS- és fehérjeszintézis
□ : optikai sürüség; ciszteinkezelés előtt /A/, alatt /B/ és után /C/.

Az első görbe a sugárérzékenységnek, a második a hideg savoldható SH-szintnek, a harmadik a makromolekulák bioszintézisének, a negyedik a tenyészet növekedésének változását mutatja ciszteines kezelés előtt /A/, alatt /B/ és után /C/. Megállapitható, hogy mind a cisztein hatására létrejött sugárrezisztencia-fokozódásnak, mind a rezisztencia-csökkenésnek van gyors és lassu fázisa. A gyors fokozódás, illetve a cisztein eltávolitása utáni gyors csökkenés a sejtek hideg savoldható SH-tartalmának változásával hozható párhuzamba. Ugyanakkor a lassu fázisok a makromolekulák szintézisének kiegyensulyozatlanná válásával, illetve az egyensuly helyreállitásával mutatnak párhuzamot.

A továbbiakban arra kérdésre kivántunk választ adni, hogy maga a reverzibilis sejtosztódásgátlás, vagy a hátterében álló kiegyensulyozatlan makromolekulaszintézis-e az oka a sugárrezisztencia fokozódásának.



6. ábra

E.coli TAU⁻ sejtek sugárérzékenységének változása DNS-többletet eredményező /A/, illetve nem eredményező /B/ kezelés után

"A" rész:
- Δ : 2 mM cisztein
- ▲ : glükózmegvonás
- O : stacioner fázisból származó sejtek sugárérzékenysége
- □ : AU-megvonás
- ● : kontroll

"B" rész:
- ▽ : 0,3 mM jódacetamid /JOAM/
- ▲ : 328 mM hidroxiurea /HU/

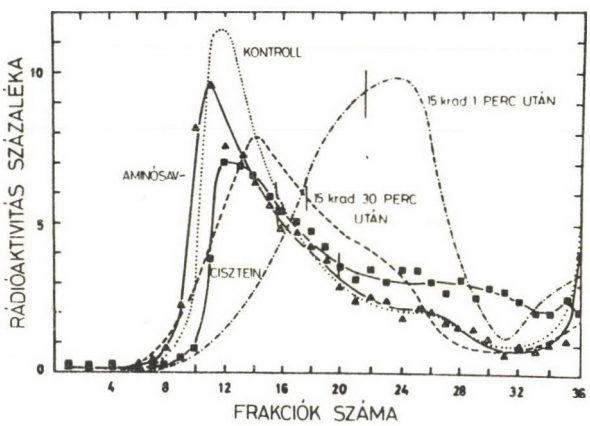
A 6. ábra "A" részében relativ DNS-többletet eredményező kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézist kiváltó kezelések E.coli TAU⁻ sejtek sugárérzékenységére kifejtett hatását láthatjuk. Ilyennek bizonyult a ciszteinkezelés, az energiaforrás /glükóz/ megvonása és az esszenciális arginin-uracil-megvonás. Ugyanez volt tapasztalható a logaritmikus-stacioner fázisok átmenetéből származó sejteknél. A "B" részben a relativ RNS- és fehérjetöbbletet eredményező kiegyensulyozatlan szintézist kiváltó hidroxiurea, illetve reverzibilis sejtosztódást kiváltó, de kiegyensulyozatlan szintézist nem okozó jódacetamidos kezelés hatását ábrázoltuk. A tulélő görbék lefutásából látható, hogy az E.coli sejtek sugárrezisztenciáját csak a relativ DNS-többletet eredményező kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézist kiváltó kezelések fokozzák.

ad 4. Kisérleteink következő szériájában arra kérdésre kerestünk választ, hogy a cisztein metabolikus jellegü sugárvédő hatása az E.coli sejtek intrinsic sugárrezisztenciáját fokozza-e, vagy a sugárkárosodás után a sejtek kapacitását növeli. Kisérleteinkben különböző repair kapacitásu mutánsokat, repair szinté-

zistcsökkentő bázisanalógokat, illetve repair-gátló anyagokat /koffeint és akriflavint/ alkalmaztunk mikrobiológiai jellegü kisérletekben, továbbá alkalikus szaharóz sürüségi gradiensben végbemenő DNS-ülepedés meghatározása segitségével "single strand" törések kialakulását, illetve helyreállási folyamatait tanulmányoztuk.

Az eredményekből arra következtettünk, hogy a cisztein által kiváltott savoldható SH-szint fokozódás a sejtek intrinsic sugárérzékenységét csökkenti, mig a cisztein kezelés által létrehozott kiegyensulyozatlan makromolekulaszintézis a sejtek repair kapacitásának fokozásán keresztül növeli a sugárrezisztenciát.

A cisztein az ionizáló sugárzás okozta "single strand" DNS törések ellen is véd /esetleg gyorsitja repair folyamataikat/. Ennek kiértékelése azonban nehéz, mivel a cisztein önmaga is "single strand" töréseket okoz, amely biológiai szempontból nem azonos értékü az ionizáló sugárzás okozta törésekkel. Ezen megállapitásunk egyébként hosszu kisérletsorozaton alapul, amelyből egy reprezentativ ábrát mutatunk be.



7. ábra

Ciszteinkezelés és aminosavmegvonás hatása DNS-"single strand" törésekre és helyreállitásukra, a besugarazást követő 37°C-on történő inkubálás alatt, E.coli K12 törzsben

..... : besugarazatlan /kontroll/ minták
-.-.-.- : besugarazott, ezután nem inkubált minták
------- : besugarazott, ezután 30 percig inkubált minták
▲ : aminosavmegvonás hatása
■ : ciszteinkezelés hatása

Az ábra a ciszteines előkezelések, illetve arginin-megvonásnak a besugárzás által kiváltott DNS "single strand" törésekre, illetve helyreállásukra kifejtett hatását ábrázolja E.coli K12 /AB 2497/rec$^+$ törzsön. A görbék a ^{3}H-jelzett timint tartalmazó DNS McGrath és Williams módszerével kivitelezett ülepedését mutatják a be nem sugarazott, illetve a 15 kraddal besugarazott sejteknél. Az ábra adatai is hozzájárulnak előbbi következtetéseink levonásához.

A cisztein metabolikus sugárvédő hatása tehát a cisztein által okozott azon anyagcsereváltozások összessége, amelyek a sejteket sugárrezisztensebb fiziológiai állapotba hozzák. A cisztein az általunk alkalmazott E.coli tör-

zsekben számos anyagcsereváltozást okozott. Az E.coli sejtekre irányuló biológiai és biokémiai hatásai közül három hatást lehet kiemelni, amely a metabolikus sugárvédő effektussal kapcsolatba hozható:

1. reverzibilis sejtosztódást gátló,
2. savoldható SH szintet fokozó,
3. kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézist kiváltó hatást.

A fenti hatások összefüggenek. Valószinü, hogy a cisztein reverzibilis sejtosztódást gátló hatását elsődlegesen a leucin, izoleucin, treonin és valin aminosavak bioszintézisében résztvevő enzimek - elsősorban a HSDH és AHAS - gátlása okozza. Azáltal, hogy a fehérje- és RNS-szintézis azonnali gátlása mellett a DNS-szintézis egy ideig tovább halad, relativ DNS-többletet eredményező kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézis jön létre, ez pedig - függetlenül a kezelés tipusától - mindig sugárrezisztensebb sejtfiziológiai állapotot hoz létre, igy a cisztein által kiváltott is, mivel a DNS-replikáció késik a besugarazott sejtekben, s igy lehetővé válik a sejtek repair kapacitásának jobb kihasználása.

A szerző az irodalmi adatokat az érdeklődők rendelkezésére bocsátja.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

IV

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 7.-8. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE



IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 7.-8. SZÁM

BUDAPEST 1973. JÚLIUS-AUGUSZTUS

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7584

1973. 7-8. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára
Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

Számunk irói :

Bánhidy Levente[3/]

Bertók Lóránt, az állatorvostudományok kandidátusa[6/]

Biró Katalin[17/]

Cseténvi János[12/]

Esztergályos János[17/]

Farkas György[9/]

Fehér István[8/]

Földes János, az orvostudományok kandidátusa[15/]

Füst Lászlóné[5/]

Füzy Márton[12/]

Gesztesi Erzsébet[15/]

Hernády Tibor, az orvostudományok doktora[17/]

Horváth Mihaly[2/]

Horváth Mihályné[2/]

Jász Árpád[7/]

Karika Zsigmond[12/]

Kelemen Ágnes, a biológiai tudományok kandidátusa[10/]

Kelemen Györgyné[6/]

Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa[9/]

Konrády András[3/]

Kovách Anna[6/]

Krasznai István[15/]

Kutas Vera[9/]

Lengyel Endréné[14/]

Lengyel Tamás, a kémiai tudományok doktora[7/]

Ligeti János[18/]

Ludvigh Károly[2/]

Mártonffy Katalin[16/]

Máté László[9/]

Molnár Gyula, a biológiai tudományok kandidátusa[16/]

Nyul Tóth Pál[1/]

Pál Imre[7/]

Piroska Edit[15/]

Policzer Miklós, az orvostudományok kandidátusa[3/]

Predmerszky Tibor, az orvostudományok kandidátusa[9/]

Reviczky Alice[13/]

Sárdy Józsefné[2/]

Simkovics Miklós[11/]

Stützel Mária[15/]

Szabó Imre[4/]

Szántó László, az orvostudományok kandidátusa[13/]

Szentessyné Számel Irén[12/]

Szilvási István[16/]

Szirtes László, a kémiai tudományok kandidátusa[7/]

Tahy Ádám[3/]

Takács Józsefné[15/]

Tarján György[12/]

Törkő János[7/]

Vándor Ferenc, az orvostudományok kandidátusa[4/]

Varga László[9/]

Zoltán László, az orvostudományok kandidátusa[11/]

Zsebők Zoltán, az orvostudományok doktora[17/]

1/ Állami Fodor József Gyógyintézet, 1528 Budapest

2/ Balatonfüredi Állami Szivkórház, 8231 Balatonfüred 1, Pf.13

3/ Fővárosi VIII.ker.Tanács V.B.Balassa János Kórháza, 1088 Budapest, Vas u.17

4/ Fővárosi Onkoradiológiai Intézet Weil Emil Területi Vezető Kórház, 1426 Budapest, Pf.6

5/ Gamma Müvek, 1509 Budapest Pf.1

6/ Gyógyszerkutató Intézet, 1045 Budapest, Szabadságharcosok utja 47/49

7/ MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.77

8/ MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, 1525 Budapest 114, Pf.49

9/ Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, 1221 Budapest, Pentz K.u.5

10/ Országos Gyógyszerészeti Intézet, 1145 Budapest, Uzsoki u.36/a

11/ Országos Idegsebészeti Tudományos Intézet, 1426 Budapest, Pf.25

12/ Országos Onkológiai Intézet, 1525 Budapest 114, Pf.25

13/ Országos Reuma- és Fizioterápiás Intézet, 1027 Budapest, Frankel L.ut 17/19

14/ Országos Traumatológiai Intézet, 1081 Budapest, Mező I.ut 17.

15/ Semmelweis Orvostudományi Egyetem I.sz. Belgyógyászati Klinikája, 1083 Budapest, Korányi S.u.2

16/ Semmelweis Orvostudományi Egyetem III.sz. Belgyógyászati Klinikája, 1081 Budapest, Mező I.ut 17.

17/ Semmelweis Orvostudományi Egyetem Radiológiai Klinikája, 1082 Budapest, Üllői ut 78

18/ Tétényi uti Kórház, 1115 Budapest, Tétényi ut 12/16

T A R T A L O M

A DIAGNOSZTIKÁBAN ÉS TERÁPIÁBAN ALKALMAZOTT RADIOAKTIV ORVOSI KÉSZITMÉNYEK cimü KGST szimpózium /1973. május 14-18, Szeged/ magyar elõadásai

^{125}I-fibrinogén elõállitása és biológiai sajátosságai 354
Kocsár L., Kutas V., Merétey K., Ligeti J., Krasznai J.

Изготовление и проверка биологических свойств ^{125}I-фибриногена

Preparation and Biological Control of ^{125}I-Fibrinogen

^{125}I-dal jelzett fibrinogén sugárexpoziciójának közelitése 357
Farkas Gy., Kutas V., Predmerszky T.

Приближение лучевой экспозиции фибриногена, меченного ^{125}I

Approximation of Radiation Exposure by ^{125}I-Labelled Fibrinogen

Friss thrombus ^{125}I-fibrinogénnel való lokalizálhatóságáról, elégtelen keringésü szivbetegek vizenyõs alsó végtagján 364
Horváth M., Ludvigh K., Kocsár L., Kutas V., Horváth M.né, Sárdy J.né

О локализуемости свежего тромба с помощью меченного ^{125}I фибриногена на нижней конечности сердечных больных с отеком, при недостаточным кровообращением

On the Localizability of Fresh Thrombus on Oedematic Lower Limbs of Cardiacs with Insufficient Circulation

In vitro pajzsmirigymüködés-vizsgálatok 370
Földes J., Piroska E., Gesztesi E., Takács J.né

Исследование функционального состояния щитовидной железы в условиях in vitro

In vitro Investigation of Thyroid Function

ETR vizsgálatokkal szerzett tapasztalataink 375
Hernády T., Mártonffy K., Biró K.

Опыты при исследованиях ЭТР

Experiences with ETR Tests

^{131}I-tiroxin és ^{131}I-trijódtironin stabilitásának vizsgálata és a radiolitikus bomlás befolyása egyes diagnosztikus tesztekre 378
Reviczky A., Szántó L.

Исследование стабильности ^{131}I-тироксина и ^{131}I-трийодтиронина и влияние их радиолиза на результаты отдельных диагностических проб

Investigations on the Stability of ^{131}I-Thyroxine and ^{131}I--Triiodothyronine and the Influence of Radiolytic Degradation on Some Diagnostic Tests

Tapasztalatok a radioimmunoassay módszerek beállitásánál 387
Merétey K., Kocsár L., Földes J.

Опыты при установке метода радиоиммуноэссе

Experiences with the Adjustment of Radioimmunoassay Methods

A Gordox jódizotóppal való jelzése és biológiai tulajdonságai 391
Kutas V., Kocsár L., Krasznai I., Kelemen Á., Bertók L.

Метка "Гордокс" изотопом йода и его биологические свойства

Labelling of Gordox with Iodine Isotope and Its Biological Features

A hyperthyreosis ^{125}I és kombinált radiojód /^{125}I+^{131}I/ terápiájával szerzett tapasztalataink 396
Konrády A., Tahy Á., Bánhidi L., Policzer M.

Лечение гипертиреоза радиоактивными изотопами ^{125}I и ^{131}I

Experiences with the ^{125}I and Combined /^{125}I+^{131}I/ Radioiodine Therapy of Hyperthyreosis

$^{113}In^{m}$SMAA - tüdőszcintigráfiára alkalmas uj radiofarmakon 401
Cseténvi J.,Szentessyné Számel I., Füzy M., Karika Zs.

Альбумин макроагрегат, содержащий сульфид радиоиндия - Изготовление нового радиофармакона для легочной сцинтиграфии, его биологическое поведение

$^{113}In^{m}$-SMAA - A New Radiopharmacon for Lung Scintigraphy

Radioaktiv diagnosztikumok radiokémiai tisztaságának dozimetriai jelentősége 406
Predmerszky T., Farkas G.

Дозиметрическое значение радиохимической чистоты радиоактивных диагностикумов

Dosimetrical Importance of Radiochemical Purity of Radioactive Diagnostical Preparates

Diagnosztikai jelentőségü radioaktiv fémkomplexek előállitása és analitikai vizsgálata 412
Pál I., Jász Á., Kovách A., Kelemen Gy.né

Получение и аналитическое исследование радиоактивных металлокомплексов диагностического значения

Preparation and Analytical Control of Radioactive Metal Complexes of Diagnostic Importance

Radioaktiv fémkomplexek farmakológiai vizsgálata 418
Pál I., Földes J., Krasznai I.

Фамакологическое изучение радиоактивных металлокомплексов

Pharmacological Control of Radioactive Metal Complexes

Glomeruláris filtráció mérése kisérleti állatokban egyinjekciós módszerrel 423
Molnár Gy., Stützel M., Szilvási I., Lengyel E.né, Pál I.

Измерение гломерулярной фильтрации методом разовой инъекции в опытных животных

Measurement of Glomerular Filtration with One-Injection Method in Test Animals

Agytumor-szcintigráfia ^{169}Yb-komplexekkel 435
Zoltán L., Pál I., Simkovics M.

Сцинтиграфия опухоли мозга с комплексами ^{169}Yb

Brain Tumor Scintigraphy with ^{169}Yb Complexes

Összehasonlító agyszcintigráfiás vizsgálatok radioaktiv indiummal /$^{113}In^{m}$-EDTA/ és radioaktiv szamáriummal /^{153}Sm-DTPA/ 440
Tarján Gy., Pál I., Karika Zs., Füzy M., Szentessyné SZámel I.

Сравнительные мозгово-сцинтиграфические исследования с помощью радиактивного индия-113-ЭДТА и радиоактивного самария-153-ДТПА

Comparative Brain Scintigraphy Examinations by Means of Radioactive Indium /$^{113}In^{m}$-EDTA/ and Samarium /^{153}Sm-DTPA/

^{169}Yb-EDTA vesedinamikai vizsgálata gamma-kamerával 446
Molnár Gy., Przedlacki J., Pál I.

Исследование ^{169}Yb-ЭДТА-динамики почек гамма-камерой

Investigation of the Dynamics of ^{169}Yb-EDTA in Kidneys with Gamma-Camera

^{169}Yb-komplexek alkalmazása ciszternográfiára és myeloszcintigráfiára 451
Pál I., Simkovics M., Zoltán L.

Применение комплексов ^{169}Yb в сцинтиграфии и миэлосцинтиграфии

Use of ^{169}Yb Complexes in Cysternography and Myeloscintigraphy

Extracelluláris folyadékok vizsgálata radioaktiv fémkomplexekkel .. 456
Pál I., Molnár Gy., Szilvási I.

Исследование экстрацеллюлярного пространства радиоактивными металлокомплексами

Investigation of Extracellular Liquids by Radioactive Metal Complexes

Radioaktiv szamáriumkomplex /^{153}Sm-EDTA/ a csont szcintigráfiás vizsgálatában 460
Karika Zs., Pál I., Tarján Gy., Füzy M., Nyul Tóth P.

Применение радиоактивного комплекса самария-153-ЭДТА в сцинтиграфии кости

Application of Radioactive Samarium Complex /^{153}Sm-EDTA/ in the Scintigraphy of Bones

Radioaktiv fémkomplexek retenciójának vizsgálata patkányokon 465
Máté L., Varga L., Farkas Gy., Pál I., Fehér I.

Изучение в опытах на крысах задержки радиоактивных металлокомплексов

Investigations on the Retention of Radioactive Metal Complexes in Rats

Radiohigany-vegyületek sugárterhelésének csökkentése kelátképzéssel 473
Szabó I.

Применение комплексообразующих соединений для снижения лучевой нагрузки при использовании в диагностических целях радиоизотопных препаратов ртути

Lowering of the Radiation Burden of Radiomercury Compounds by Chelate Formation

Radiohigany-vegyületek a rosszindulatu daganatok diagnosztikájában 476
Vándor F., Szabó I.

Применение радиоизотопных препаратов ртути в диагностике злокачественных опухолей

Radiomercury Compounds in the Diagnostics of Malignant Tumors

A szivizomzat perfuziójának nukleáris módszerrel, emberen való mérésének lehetőségéről 482
Horváth M., Ludvigh K., Füst L.né, Lengyel T., Szirtes L.

О возможностях измерения перфузии сердечной мышцы радиоактивным методом на человеке

On the Possibilities of Measuring the Perfusion of Heart Musculature on Man by Nuclear Method

Kálium-43-mal jelzett gyógyászati kálium-klorid előállitása 488
Törkő J., Szirtes L.

Получение медицинского препарата хлористого калия, меченного калием-43

Preparation of Medical Potassium Chloride, Labelled with Potassium-43

Pozitiv tumorszcintigráfiás vizsgálatok ^{67}Ga-citráttal 492
Zsebők Z., Mártonffy K., Esztergályos J.

Позитивные тумор-сцинтиграфические исследования с цитратом ^{67}Ga

A DIAGNOSZTIKÁBAN ÉS TERÁPIÁBAN ALKALMAZOTT
RADIOAKTÍV ORVOSI KÉSZÍTMÉNYEK

című KGST szimpózium /1973. május 14-18, Szeged/
magyar előadásai

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/354-356

^{125}I-FIBRINOGÉN ELŐÁLLÍTÁSA ÉS BIOLÓGIAI SAJÁTOSSÁGAI

Kocsár L.*, Kutas V.*, Merétey K.*, Ligeti J.**, Krasznai I.***
*Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest
**Tétényi uti Kórház, Budapest
***Semmelweis Orvostudományi Egyetem, I.Belgyógyászati Klinika, Budapest

Nyulakban in vivo mütéti uton indukált thrombus detektálhatósága fibrinogénnel.
Изготовление и проверка биологических свойств ^{125}I-фибриногена
Кочар, Л., Куташ, В., Меретеи, К., Лигети, Й., Краснаи, Я.
Детектируемость фибриногеном тромба, вызванного в заящах оперативным путем.
Preparation and Biological Control of ^{125}I-Fibrinogen
Kocsár, L., Kutas, V., Merétey,K., Ligeti, J., Krasznai, J.
Detectability of thrombus, induced in vivo by surgical intervention in hares.

A ^{125}I-dal jelzett fibrinogént mélyvénás trombózisok kimutatására használják. A legelterjedtebb módszer szerint szcintillációs számlálóval, kb. 10 cm-es távolságokban végeznek méréseket a végtagok felett, 100 µCi ^{125}I-fibrinogén i.v. beadása után. A sziv fölött kapott impulzusszámot 100 %-nak véve a végtagok felett kapott mérési értékeket ennek százalékában fejezik ki. A méréseket általában 2 héten át végzik, naponta.

Ha thrombus kimutatását korai szakaszban -szcintigráfiásan- kisérelték meg, nagyszázalékban kaptak negativ eredményt /67 %/, olyan betegeknél, akiknél ^{131}I-HSA-makróagregáttal biztosan kimutattak tüdőembóliát, a végtagtrombózist pedig bilaterális perkután iliofemorális phlebographiával igazolták.

A fibrinogén inkább az aktivan képződő thrombusba épül be. A már kialakult trombusra kevés fibrinogén rakódik rá.

Megvizsgáltuk kisérleti állatokban in vivo mütéti uton indukált thrombus detektálhatóságát ^{125}I-fibrinogénnel.

A kisérletekhez mindkét nembeli, 2,5-3 kg sulyu nyulakat használtunk. Thrombusképzésre az állatok vena jugularisát preparáltuk ki. Ennek előnye, hogy az állat méreteihez képest viszonylag tág, felületesen fut, igy könnyen hozzáférhető. Nagy thrombus képezhető, ugyanakkor az állat vitális funkcióit nem kárositja.

A thrombusképzés kivitele: éternarkózisban kb. 2 cm-es szakaszon kipreparáljuk, majd izoláljuk a vena jugularist. Mindkét irányban aláfüzzük, majd leszoritjuk, hogy a véna közben kiürüljön. A üres vénaszakaszba 1 ml Thrombovart /Globopharm A.G./ fecskendeztünk érfalkárositás céljából. 5 perc mulva a Thrombovart eltávolitjuk, helyére thrombint /Topostatin, F. Hoffmann -La Roche et Co./ fecskendezünk, a perifériás aláfüzést pedig eltávolitjuk. A kárositott érszakaszon azonnal massziv thrombus képződött. Hogy a képződött thrombus a károsodott érfalhoz rögzüljön, a proximális aláfüzés helyére a lument felére szükitő gumigyürüt helyeztünk, melyet 24 óra elteltével, kivezetett szárai segitségével könnyen eltávolithattunk. Ezáltal biztositottuk, hogy a thrombus a természetes viszonyoknak megfelelően a keringés számára mindkét irányból hozzáférhetővé váljon.

Az intézetünkben előállitott fibrinogén KABI gyártmány. ^{125}I-dal való jelzését elektrolitikusan, Rosa módositott módszerével végeztük. A fajlagos aktivitás 100 µCi/mg volt. Biológiai aktivitása az alvaszthatóság alapján 90 %-nak bizonyult. A fibrinogént 100 µCi-nként szétosztva, liofilezve tároljuk.

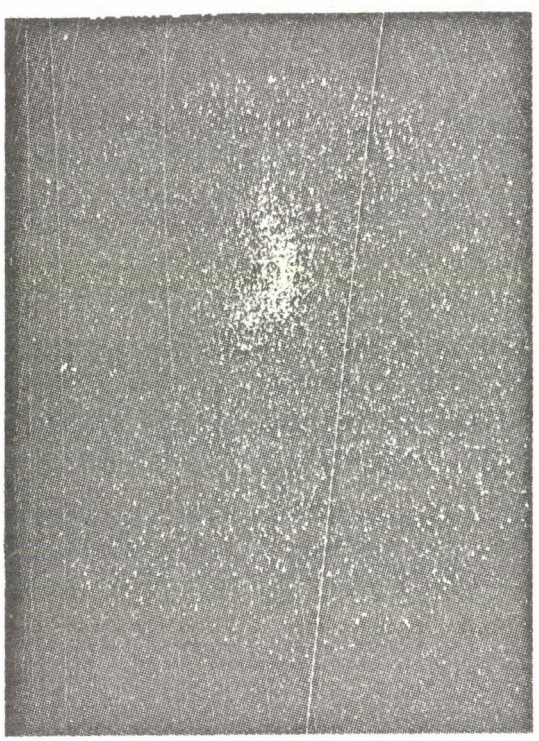
Mivel nyulaknak humán fibrinogént adtunk be, az immunológiai szempontból heterológ rendszerben fokozott anyagcserére, gyorsabb kiürülésre kellett számitanunk. Az is ismeretes, hogy a species differentia - az alvadási mechanizmust illetően - meglehetősen nagy, egyes kisérleti állatfajok - patkány, nyul, kutya - és az ember között.

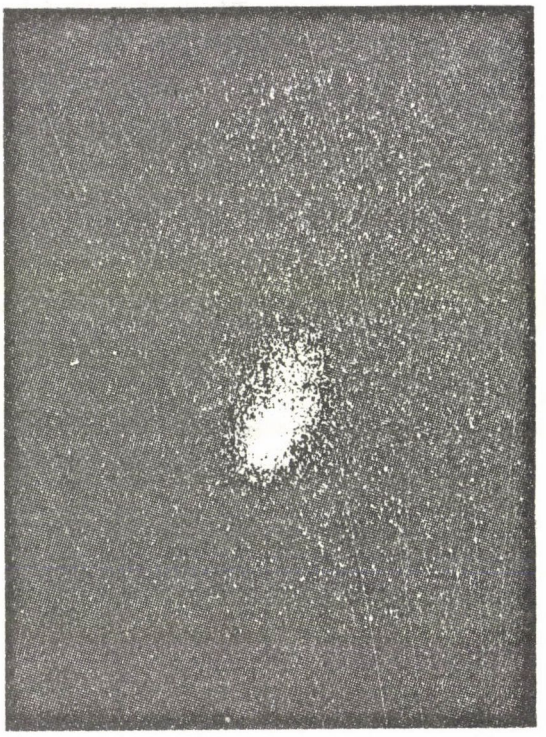
Vizsgálataink menete a következő volt: 3 napon át /szájterpesz segitségével/ napi 1,0 ml Lugol oldat peroralis adagolásával blokkoltuk az állatok pajzsmirigyét. A 4. napon végeztük a thrombusindukáló mütétet, majd közvetlenül a mütét után adtuk be a fibrinogént, fiziológiás konyhasóban, intravénásan.

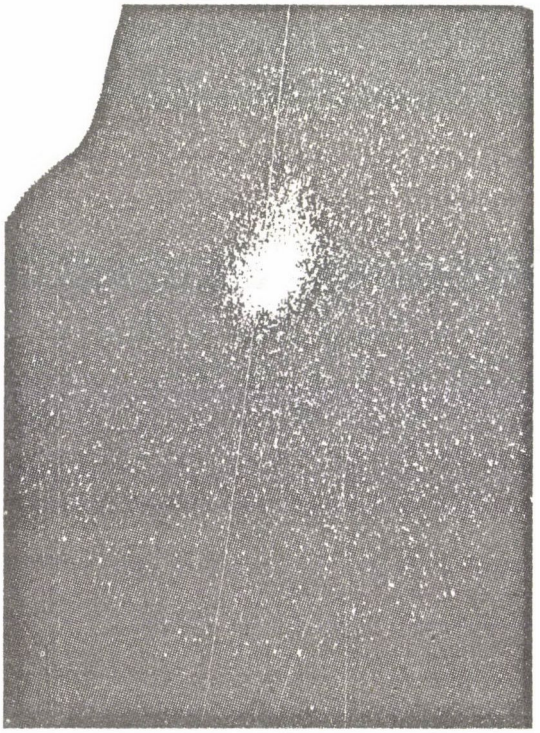
24, 48 és 72 órával a fibrinogén beadása után kiséreltük meg a thrombus leképezését szikrakamerával. A detektorfejet kontakt alkalmaztuk a vizsgálandó testfelületre, ez esetben a mütéti heg fölé /4 x 5 cm-es Polaroid filmet használtunk, a látótér átmérője 15 cm volt, a szikrakamera MECASERTO, francia gyártmányu/.

Az in vivo képezett, ^{125}I-fibrinogénnel jelzett thrombus segitségével bepillantást kaphatunk különféle thrombolytikumok hatásmódjára, a lysis kinetikájára.

Alkalmas az eljárás kis laboratóriumi állatokon végzett más tipusu kisérletekre is, mint pl. a jelzett fibrinogén tu. localizációja.







1. ábra

Szikrakamerás felvételek a ^{125}I-fibrinogénnel jelzett thrombusról /a beadást követő 24, 48, illetve 72 órában készitve/

IRODALOM

1. *D.Negus* et al., Brit. J. Surg. 55 /1968/ 835
2. *G.E. Mavor* et al., The Lancet 1972 március 25. pp. 661-663
3. *H.J. Fernholz* et al., Forsch. Gebiete Röntgenstr. Nuklearmed., 113 /1970/ 1
4. *A.M. Hedlin* et al., Canad. Phys. Pharmacol., 50 /1972/ 11

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/357-363

^{125}I-DAL JELZETT FIBRINOGÉN SUGÁREXPOZICIÓJÁNAK KÖZELITÉSE

Farkas Gy., Kutas V., Predmerszky T.
Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

Patkányokba ^{125}I-fibrinogént injiciáltak, az állatokat 10 perc, 3, 6, 24, 72, ill. 144 óra mulva megölték, majd meghatározták a tüdő, máj, lép, vese, gyomor, gonádok, pajzsmirigy és bél sulyát és aktivitását.

Приближение лучевой экспозиции фибриногена, меченного ^{125}I
Фаркаш, Дь., Куташ, В., Предмерски, Т.
Крысы получили впрыскивания ^{125}I-фибриногена, были прирезаны через 10 мин, 3, 6, 24, 72 и 144 часов после получения изотопа, потом были определены вес и активность легких, печени, селезенки, желудка, яичек, щитовидной железы и кишки.

Approximation of Radiation Exposure by ^{125}I-Labelled Fibrinogen
Farkas, Gy., Kutas, V., Predmerszky, T.
Injection of ^{125}I-Fibrinogen into rats. Animals were killed after 10 min, 3, 6, 24, 72 and 144 hours, resp., and the weight and activity of lungs, liver, spleen, kidneys, stomach, gonads, thyroid and intestines were determined.

BEVEZETÉS

A radioaktiv jóddal jelzett fibrinogént ma már rutinszerüen alkalmazzák a gyógyászatban. Statisztikai analizis alapján 40 évnél idősebb betegeknél - mütéti beavatkozás után - kb. 35 %-ban lép fel postoperativ trombózis. A vénás trombózisnál nagyon fontos a korai diagnózis, mert igy megelőzhető a gyakran végzetes kimenetelü tüdőembólia, továbbá egyéb szövődmények. A mélyvénás trombózis gyógyitása akkor hatékony, ha a thrombus képződést követő 1-2 napon belül meg tudják kezdeni a kezelést.

A radioaktiv jóddal jelzett fibrinogén i.v. injektálás után épül be a thrombusba. A thrombust külső detektálással lehet lokalizálni. Ezt a vizsgálatot egy betegnél többször is elvégzik 14 napon át.

Intézetünkben közel két éve állitjuk elő - humán diagnosztikai célra - a ^{125}I-dal jelzett, liofilezett, steril humán fibrinogén injekciót. 1-1 ampulla egy vizsgálatra elegendő anyagot tartalmaz. Radioaktivitása ampullánként 100 µCi, és ezt az aktivitást 1 mg fibrinogén hordozza /fajlagos aktivitása

100 µCi/mg/. Az ampulla a fibrinogénen kivül konyhasót /0,9 mg/, vértartósitó oldatot /1,2 - 1,6 mg Na-citrát/, dextrózét /1,2 - 3,4 mg/ és humán albumint /2-5 mg/ tartalmaz.

Radiokémiai tisztaság szempontjából az aktivitás több mint 95 %-a fehérjéhez kötött.

Szükségesnek látszott megvizsgáli, mekkora sugárterhelés éri a szervezetet a rutinszerü alkalmazott 100 µCi-s dózis beadása után.

MÓDSZEREK

Az egésztestet, illetve kritikus szerveket ért sugárterhelés megitélésére állatkisérleteket végeztünk. 150-200 g sulyu R/A x LE/H/F_1 hibrid patkányokat használtunk. A ^{125}I-fibrinogént - 0,2 ml össztérfogatban - a patkányok farokvénájába injiciáltuk, állatonként 20-20 µCi-t. A beadást követően az egyes kisérleti állatcsoportokat 10 perc, 3, 6, 24, 72 és 144 óra mulva dekapitálással leöltük, szerveiket kipreparáltuk. Négy állaton - egésztest-számlálóval - a fibrinogén retenciós görbéjét határoztuk meg.

A preparálást követően megmértük a tüdő, máj, lép, vese, gyomor, gonádok, pajzsmirigy, bél sulyát. A szervekből mintát vettünk, és azt homogenizáltuk. Az emlitett szerveken kivül mintát vettünk még az izomból, a vérből és az egyik femurból. A homogenizátumok aktivitását ^{125}I-re érzékeny üreges kristályban mértük. Az eredményeket átszámitottuk a teljes szervre, és standard minta alapján meghatároztuk a szervekben lévő aktivitást a beadott mennyiség százalékában.

VIZSGÁLATI EREDMÉNYEINK ÉRTÉKELÉSE

Halmozódási értékek

Az egyes szervekben halmozódott aktivitás mennyiségét az 1. táblázat mutatja.

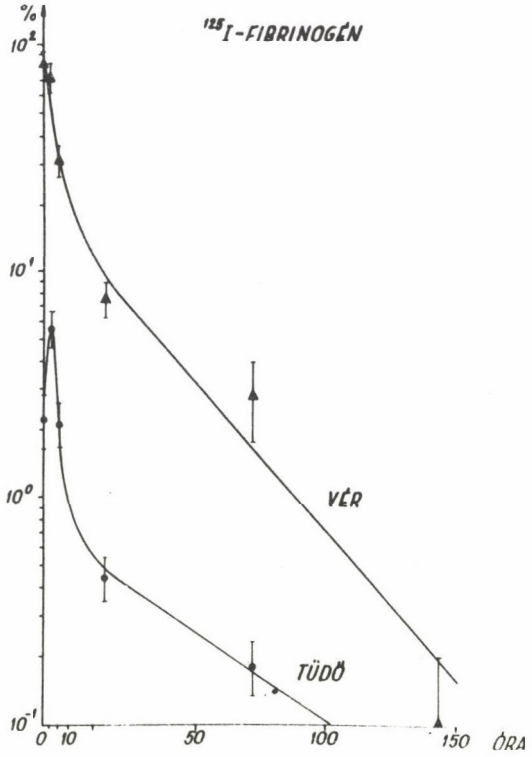
Feltüntettük a mérési eredmények középértékét és szórását. Dozimetriai számitásainkat a tüdőre, májra, vesére, gyomorra, gonádokra és az egésztestre végeztük el. Méréseink alapján a pajzsmirigyben is jelentős aktivitást észleltünk, de ez, véleményünk szerint, a jelzett vegyületben szennyezőként jelenlévő szabadjód mennyiségétől függ. Maximális értéke 5 %, és hatása a pajzsmirigy blokkolásával csökkenthető. Tekintettel arra, hogy a pajzsmirigy dozimetriáját már alaposan és sokoldaluan kidolgozták, erre vonatkozóan nem végeztünk dozimetriai becsléseket. A táblázat adatait féllogaritmusos koordinátarendszerben ábrázolva a következő görbéket kaptuk. /1.,2.,3. és 4. ábra/

A függőleges tengelyen a szerv aktivitását a beadott mennyiség százalékában, a vizszintes tengelyen az időt ábrázoltuk.

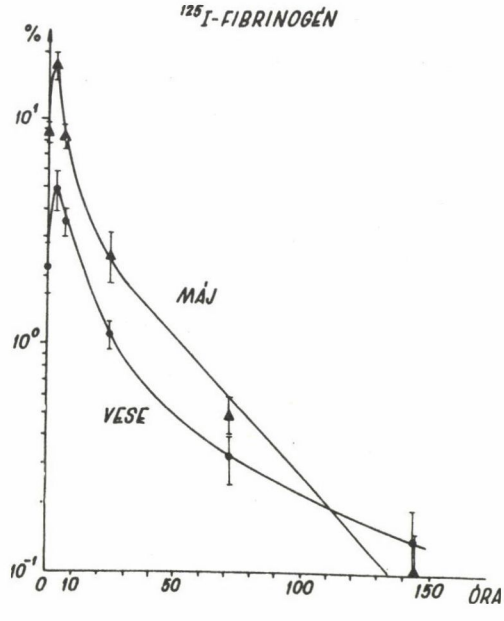
1. táblázat

Halmozódási értékek az alkalmazott dózis %-ában
/középértékek és szórás/

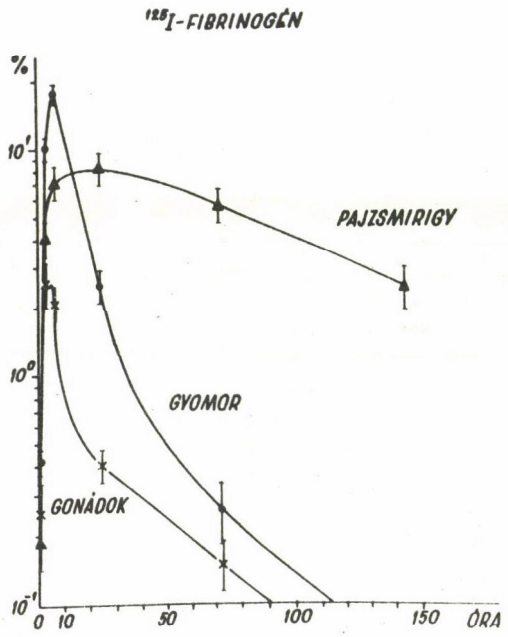
Szerv	Injektálás utáni idő órában					
	0,16	3	6	24	72	144
tüdő	2,2 ±0,6	5,5 ±1	2,1 ±0,55	0,44±0,1	0,18±0,05	0,04±0,01
máj	8,7 ±1	17,5 ±2,2	8,4 ±1,1	2,5 ±0,65	0,49±0,1	0,1 ±0,05
lép	0,47±0,15	0,95±0,05	0,66±0,15	0,14±0,08	0,05±0,03	0,01±0,01
vese	2,2 ±0,16	4,9 ±1	3,5 ±0,5	1,1 ±0,15	0,32±0,08	0,14±0,03
gyomor	0,42±0,05	10,1 ±1,1	17,8± 1,3	2,5 ±0,4	0,26±0,08	0,05±0,01
gonádok	0,25±0,09	2,6 ±0,6	2,1 ±0,4	0,4 ±0,07	0,15±0,04	0,03±0,02
vér	85,0 ±5	72,0 ±10	31,0 ±5	7,6 ±1,3	2,8 ±1,1	0,1 ±0,1
pajzs-mirigy	0,18±0,05	4,1 ±0,8	7,2 ±1,2	8,4 ±1,4	5,7 ±1	2,4 ±1



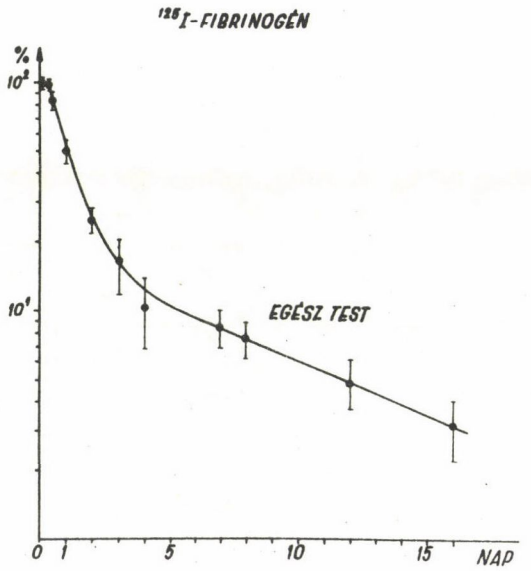
1. ábra



2. ábra



3. ábra



4. ábra

Dozimetria

A "standard ember" egyes szerveiben abszorbeált energiadózis értékét a Medical Internal Radiation Dose /MIRD/ Committee által javasolt módszer szerint végeztük el.

A közepes energiadózist /$\bar{D}$/ a következőképpen definiálták:

$$\bar{D}_{(v \leftarrow r)} = \frac{\tilde{A}_r}{m_v} \Sigma \Delta_i \varphi_{i(v \leftarrow r)} \quad \text{rad}$$

$\bar{D}_{(v \leftarrow r)}$ = az r sugárforrástól a v térfogatban abszorbeált közepes dózis radban

$\tilde{A}_r$ = az r sugárforrásban kummulálódott aktivitásu µCih-ban

m_v = a v térfogat tömege g-ban

Δ_i = a i-k sugárzás ekvivalens dóziskonstansa

Φ_i = az i-k sugárzás v-ben abszorbált része

A kifejezésben szereplő r sugárforrás lehet pontszerü vagy felületen elhelyezkedő, vagy egy térfogatban homogén eloszlásu.

Az itt közölt módszerrel a ^{125}I γ-, röntgen- és elektronsugárzásának összes energiájára külön-külön ki lehet számitani a dózisértéket.

Kifejezésünk, abban az esetben, ha a sugárforrás homogén eloszlásban a v térfogatban helyezkedik el, a következőképpen módosul:

$$\bar{D}_{(v\leftrightarrow v)} = \tilde{C}_v \sum_i \Delta_i \varphi_i \quad \text{rad}$$

ahol:

$\bar{D}_{(v\leftrightarrow v)}$ = a v térfogatban homogénen eloszlott sugárforrástól, a v térfogatban abszorbeált közepes dózis radban

$\tilde{C}_v$ = a v térfogatban kummulálódott radioaktiv koncentráció μCih/g-ban

$\varphi_{i(v\leftrightarrow v)} = \frac{\text{a v térfogatban abszorbeálódott i-k sugárzás energiája}}{\text{a v térfogatban emittálódott i-k sugárzás energiája}}$

$\tilde{C}_v$-re általánosan mondhatjuk

$$\tilde{C} = \int_0^\infty C(+)\,dt = 1{,}44 \sum_j C_j(0)\, T_{jeff}$$

$C_j(0)$ - az ürülési görbe j-ik exponenciális összetevőjének t=0 időben vett koncentrációja

T_{jeff} - az ürülési görbe j-ik exponenciális összetevőjének effektiv felezési ideje

Az abszorbeált energiadózis kiszámitásánál a következő feltételeket tettük:

az állatkisérletekben kapott halmozódási görbék megegyeznek a humán halmozódási görbékkel;

az egyes szervekben /illetve, egésztestértéknél, az egész testben/ a radioaktiv anyag homogén eloszlásu;

az egyes szervekben abszorbeált energia a szervben halmozódott sugárzó anyagtól, a szerven átáramló vérben lévő anyagtól és az egész test sugárzásából származik;

elfogadható az egyes szervek retenciós görbéinek az utolsó mérési időn tul történő extrapolációja.

A görbéből a számitásokhoz szükséges halmozódási és effektiv felezési idő értékeit a következőképpen számitottuk:

a görbe elején lévő halmozódás mennyiségét grafikus integrálás alapján határoztuk meg;

a görbe leszálló ágát exponenciális függvények szuperpoziciójának tételeztük fel, és grafikusan meghatároztuk az egyes összetevők értékeit.

A közöltekhez hasonlóan jártunk el az egész test retenciós görbéjének analizálásánál.

Táblázatosan közöljük az egyes szervek és az egész test retenciós görbéit közelitően leiró egyenleteket. Az idő-a kifejezésekben - órákban van megadva. A táblázat a t_o időt is mutatja, amikortól az egyenletet értelmeztük.

2. táblázat

Szerv	t_o	
tüdő	3	$0{,}055 \exp\left[-0{,}693\ /t-t_o/\right] + 0{,}0062 \exp\left[-0{,}0193\ /t-t_o/\right]$
máj	3	$0{,}17 \exp\left[-0{,}21\ /t-t_o/\right] + 0{,}038 \exp\left[-0{,}0283\ /t-t_o/\right]$
vese	3	$0{,}04 \exp\left[-0{,}0924/t-t_o/\right] + 0{,}0068 \exp\left[-0{,}0116\ /t-t_o/\right]$
gyomor	6	$0{,}16 \exp\left[-0{,}126\ /t-t_o/\right] + 0{,}011 \exp\left[-0{,}0224\ /t-t_o/\right]$
vér	0	$0{,}75 \exp\left[-0{,}231\ /t-t_o/\right] + 0{,}20 \exp\left[-0{,}033\ /t-t_o/\right]$
gonád	6	$0{,}02 \exp\left[-0{,}231\ /t-t_o/\right] + 0{,}006 \exp\left[-0{,}0204\ /t-t_o/\right]$
egész test	6	$0{,}83 \exp\left[-0{,}0511/t-t_o/\right] + 0{,}17 \exp\left[-0{,}0046\ /t-t_o/\right]$

Az előzőekben ismertetett feltételek mellett kiszámitottuk az egyes szervek és az egész test abszorbeált energiadózisát 100 µCi ^{125}I-fibrinogén alkalmazása esetén.

3. táblázat

Szerv	Teljes abszorbeált szervdózis
tüdő	$5{,}6 \pm 1{,}5$ mrad
máj	$15{,}6 \pm 5{,}4$ mrad
vese	$27{,}0 \pm 5{,}2$ mrad
gyomor	$55{,}0 \pm 8{,}5$ mrad
gonádok	$85{,}5 \pm 13{,}5$ mrad
egész test	$8{,}9 \pm 3{,}7$ mrad

A diagnosztikus eljárásokból adódó sugárterhelés kockázatának becslésére mértük és számitottuk az általunk előállitott ^{125}I-fibrinogén alkalmazásából eredő dózist. A halmozódási értékeket grafikonokban, a számitott értékeket táblázatokban állitottuk össze.

A táblázat értékeit közelitő jellegünek tartjuk. Nagyobb volumenü vizsgálatunk van folyamatban, mely feltehetően az egyes értékek még pontosabb meghatározásához nyujt segitséget.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/364-369

FRISS THROMBUS ^{125}I-FIBRINOGÉNNEL VALÓ LOKALIZÁLHATÓSÁGÁRÓL, ELÉGTELEN KERINGÉSŰ SZÍVBETEGEK VIZENYŐS ALSÓ VÉGTAGJÁN

Horváth M.*, Ludvigh K.*, Kocsár L.**, Kutas V.**, Horváth M-né*, Sárdy J-né*
*Állami Szivkórház, Balatonfüred
**Országos"Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

Nyomonkövették a radioaktiv fibrinogénnek a frissen keletkező thrombusba való beépülésének dinamikáját, a lokális felhalmozódás révén. Az eljárás lokalizálásra is módot nyujt.

О локализуемости свежего тромба с помощью ^{125}I-фибриногена на нижней конечности сердечных больных с отеком, при недостаточном кровообращении
Хорват, М., Лудвиг, К., Кочар, Л., Куташ, В., Хорват,М.нэ, Шарди, Й.нэ

Следилось за динамикой встроения фибриногена в свежий тромб с помощью обнаружения локального накопления активности. Метод позволяет и произведение локализации.

On the Localizability of Fresh Thrombus on Oedematic Lower Limbs of Cardiacs with Insufficient Circulation
Horváth, M., Ludvigh, K., Kocsár, L., Kutas, V., Mrs Horváth, M., Mrs. Sárdy, J.

Tracing of the dynamics of penetration of radioactive fibrinogen into fresh thrombus by its local accumulation. Method is also capable of localizing the thrombus.

Életveszélyességénél fogva a klinikum egyik legnagyobb problémája a thrombembóliás megbetegedés, ezért a keletkező thrombus időben való felismerése nagy gyakorlati jelentőségü.

A szivbetegek vénás thrombembóliáit, többek közt a Plzeni Belklinikáról M. Kučera elemezte: közel ezres beteganyagon 38,7 %-osnak találta, 13 % halálos szövődménnyel, és a vénás thrombembolizáció különösen kardialis inszufficienciában volt gyakori[1].

Humánfibrinogén radioaktiv jóddal való kiméletes jelzésével olyan alvadásaktiv metabolit birtokába jutottunk, mely éppen a végtagokon keletkező thrombotizáció felderitésére alkalmas. A radioaktiv fibrinogén, az alvadékba beépülve, a környező szövetekhez képest elegendő aktivitáskontrasztot ad, még az igen lágy γ-sugárzó ^{125}I-tel való jelzés esetén is; sőt a szövetekben erőteljesen abszorbeálódó ^{125}I még bizonyos fokban előnyös is, mivel a radiofibrinogént dusitó területet kiemeli.

Mélyebben, a parenchimás szervekben ülő thrombus kimutatására ez idő szerint még csak próbálkozások vannak, pl. a sziv golyóthrombusának feltérképezése ^{131}I-dal jelzett humán-fibrinogén-ellenes tisztitott nyul-antifibrinogénnel /RIAF/. /Egyre inkább választott módszer a megfelelő méretü radiokolloidokkal /hazánkban ez idő szerint leggyakrabban ^{131}I-dal jelzett humán szérumalbumin makroaggregáttal/ végzett tüdőszcintigráfia, melyet ágyhoz vihető, megfelelő lokalizációs detektorral kivitelezve, tüdőembólia felléptére, nagyságára, főként azonban alakulására vonatkozóan gyorsan kaphatunk támpontot./

A módszer lényege, hogy a nyomjelző beadása után frissen keletkező thrombusba a radioaktiv fibrinogén beépül. A beépülés dinamikája a lokális aktivitásfelhalmozás révén nyomon követhető, és, a thrombózisgyanus zónát aktivitás szerint feltérképezve, a kórfolyamat körülhatárolható. A thrombusba történő beépülés mértékétől függően, a normálhoz képest gyorsabban csökken a vérplazma radiofibrinogén-aktivitása, amit legcélszerübben aktivitásfeleződési időben helyes kifejezni[3, 4].

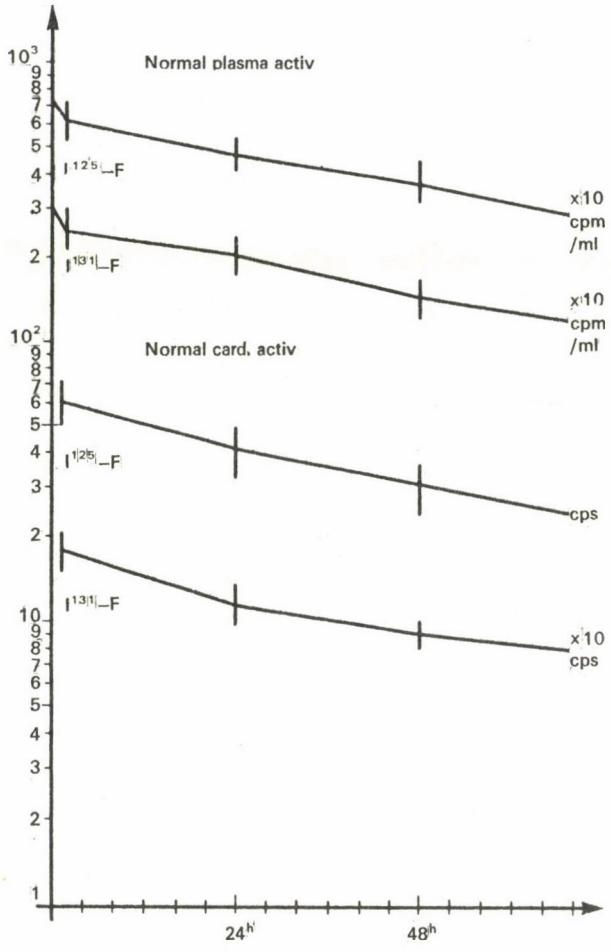
Vizsgálatainkat Kakkar[5], illetve Atkins és Hawkins[6] által leirt módszerrel, Amersham által és a hazai "Joliot-Curie" Intézetben előállitott ^{131}I, majd ^{125}I-jelzésü humán fibrinogénnel, kezdetben a Gamma Müvek energiaszelektiv számlálójához csatlakoztatott ND-113 szcintillációs szondával, majd a Nemzetközi Atomenergia Ügynökségtől kapott, Pitman-gyártmányu "isotope localisation monitor"-ral végeztük.

EREDMÉNYEK

1. ábránkon azt ábrázoltuk, hogy mind a hazai ^{131}I-fibrinogén, mint a kétfajta ^{125}I-fibrinogén injektálása után azonos tempóban csökken a plazmaminták in vitro mért radioaktivitása, és az első 2 órában fellépő un. "early loss" kb. 20 %-ban mindkét készitménynél megfigyelhető. Csaknem teljesen párhuzamos a sziv felett in vivo mért radioaktivitás-csökkenés is; ez érthető, mivel a szivben levő vértömeg nagyban a plazma mintát reprezentálja. Ezáltal válik érthetővé a lokális in vivo méréseknek a momentán szivaktivitásra vonatkoztatott %-os értékelése, lehetővé tévén, hogy elkerüljük a radioaktiv bomláskorrekciót.

A 2. ábrán a plazma ^{125}I-fibrinogénaktivitásának lefutását szemléltettük, az "early loss" figyelmen kivül hagyásával, kiindulásként a 2. órás értékeket választva. Igy a 10 "normál" egyénen 2,5 napos, 10 varikózus betegen 1,5 napos, 18 pangásos alszárvizenyőben szenvedőn 1,3 napos, mig a 3 akut, "aktiv" thrombotikuson ugyancsak 1,3 napos aktivitásfeleződést észleltünk.

3. ábránk összefoglaló jellegü, amelyen "normál" egyéneken ^{125}I-fibrinogénnel kapott lokális aktivitás százalékos átlagát és 2 szigmányi szórást

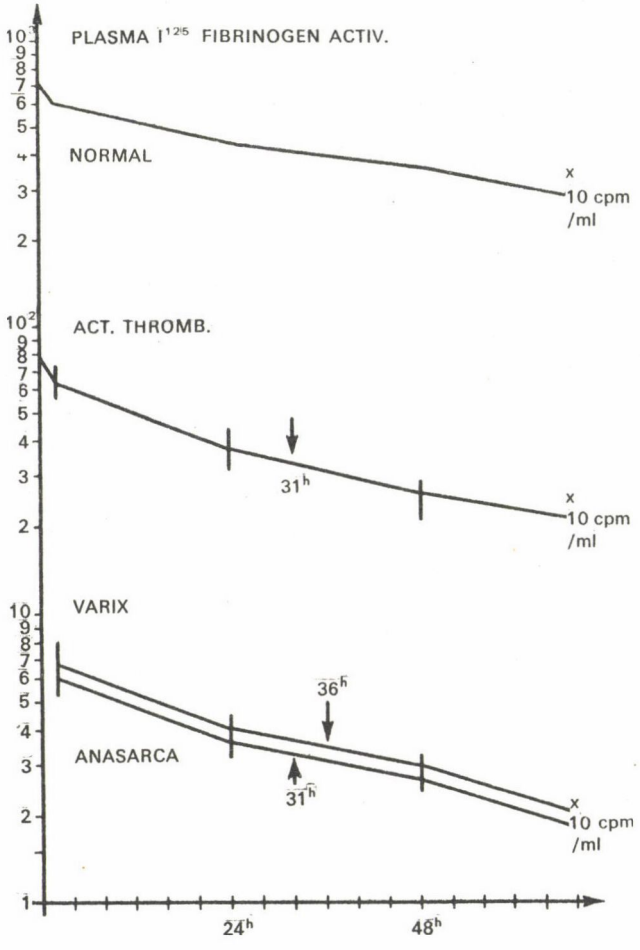


1. ábra

Plazmaminták in vitro mért radioaktivitásának időbeli csökkenése ^{131}I-, illetve kétfajta ^{125}I-fibrinogén injektálása után

szolut aktivitást jelent lokálisan is. A 3. ábráról az is kiderül, hogy az uttörő szerzők által (Atkins és Hawkins[6], Flanc és munkatársai[7], Kakkar és munkatársai, O'Brien[8], Browse és munkatársai[9], és Yeyasingh és munkatársai[10]) 15 %-on felüli,

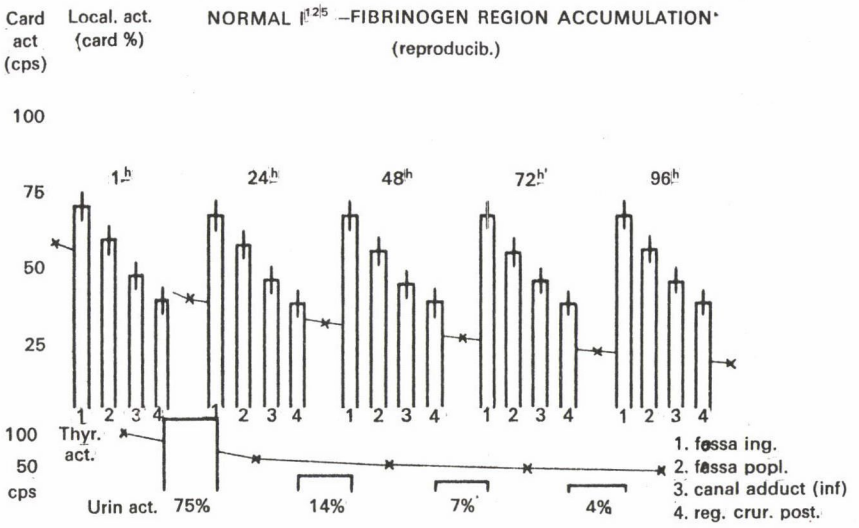
adtuk meg, a statisztikus kiértékelést türelmesen kivárt egyedi eredményekből elvégezve. Egyidejüleg feltüntettük a szivaktivitást és az előzetesen blokkolt pajzsmirigy radiojód-felvételét, valamint a vizelettel üritett radioaktivitás időbeli megoszlását is. Szabvány detektálási pontokon /ágyékhajlat, térdhajlat, adduktorcsatorna alsó nyilása és hátsó lábszárizomzat/ disztálisan csökkenő %-ban mértük az 5 nap folyamán a radiofibrinogén felvételét, ugyanakkor azonos ponton ez idő alatt az aktivitás százaléka alig változott, ami, a csökkenő szivaktivitást figyelembe véve, csökkenő ab-



2. ábra

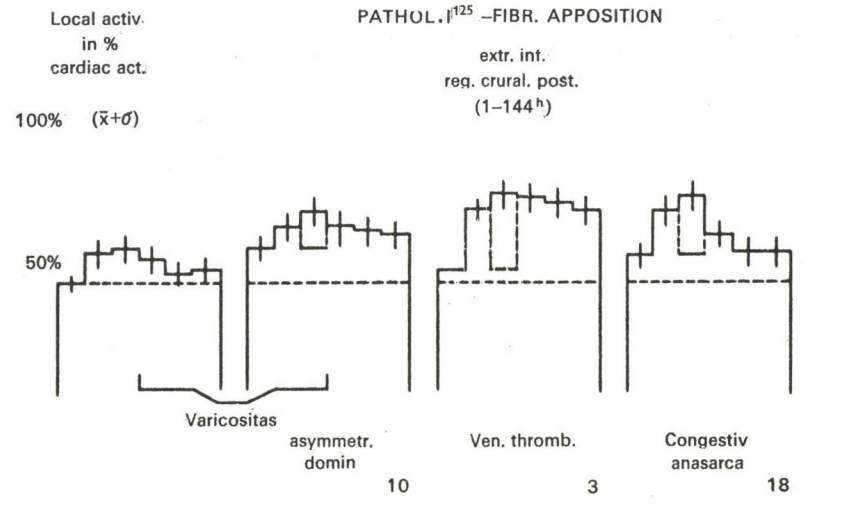
A plazma ^{125}I-fibrinogénaktivitásának csökkenése különféle betegeknél

diszkriminative megadott aktivitás-növekedés a "normál" egyénekre még elfogadható lenne.



3. ábra

A ^{125}I-fibrinogénnel kapott lokális aktivitás százalékos átlaga és 2σ szórása "normál" egyéneknél



4. ábra

A hátsó lábszárizomzatra megadott százalékos lokális akkummuláció

E grafikonunkon a hátsó lábszárizomzatra /"vádli"/ vonatkozóan adtuk meg a szintén %-ban kifejezett lokális akkumulációt, mivel ezen a ponton kinálkozott a legjobb összehasonlithatóság a különféle csoportok közt. Varikózus csoportunk két részre volt bontható, mintegy önkontrollt szolgáltatva: 3 szimmetrikus és 7 dominánsan egyoldali esetre. A szimmetrikus alcsoport radiofibrinogén-dusitása is valamivel nagyobb volt a "normálok" azonos régióiban történő radiofibrinogén-beépitésénél,de ezen tul a domináns oldal még mintegy 10 %-kal megnövekedett, és a növekedés maximálisan 3 napon belül lezajlott. A klinikailag is megalapozott mélyvénás trombózisokban észleltük a kiinduláshoz képest legnagyobbfoku, kb. 25 %-os növekedést, amely azonban meg is maradt. Végül a kongesztiv alszárvizenyős betegeken is jelentős, csaknem 20 %-os radiofibrinogén-felhalmozás volt megállapitható, azonban ugyancsak átmeneti jelleggel.

MEGBESZÉLÉS

Fentiek szerint tehát az irodalomban mélyvénás trombózisra megadott 15 %-os aktivitásnövekedési szinten némi átfedés mutatkozott a varikózus és pangásos anasarcas betegek részéről is. Bár magunk phlebográfiás összehasonlitásokat nem végeztünk, a Nemzetközi Atomenergia Ügynökségnek küldött időszakos jelentésünkben már 1971 tavaszán jeleztük a hamis pozitivitás lehetőségét, amit aztán a pangásos alszárvizenyősökön felhalmozódó tapasztalataink egyre nyomatékosabban alátámasztottak. Ezek alapján a postoperativ és rendezett keringésü esetekre megszabott 15 %-os diszkrimináció pangásos szivbetegeken friss keletü mélyvénás trombózis igazolásához nagyobbra, 25 % körülire helyezendő, és nagyon kiaknázandó a massziv thrombust alátámasztó tartós aktivitásfelhalmozás.

1971 novemberében Browse és munkatársai is a hamis pozitivitásra vezető lehetőségek közt emlitik a vizenyősséget és a gyulladásos állapotokat, köztük a felületes thrombophlebitist, akut arthritist, cellulitist, friss sebeket, fekélyesedést, továbbá a haematomát és zuzódást[9].

A sludge révén folyamatos az átmenet a thrombotizációba[11], ezért nehéz megmondani, mikor kezd egy thrombus metabolikusan aktivvá válni, önálló életet élni, ezen belül dinamikusan változatva az appozició és lizis tulsulyát. A méréstechnikai pontatlanságokon tulmenően valószinüleg ez a körülmény is közrejátszik a lokálisaktivitás-minták rendkivüli változatosságában. Pangásos lábszárvizenyőben a lokális keringéslassulásnál és permeabilitásfokozódásnál lényegesen többről, az egész szervezet eltérő fibrinogénmetabolizációjáról is szó van, jelentősen eltolódott /intra- és extravaszkuláris részesedéssel és fibrinogéndegradációval/ fibrinogénmetabolizációval.

Browse és munkatársai azt a rendkivül lényeges megállapitást tették, hogy a radiofibrinogénnel történő trombózisdiagnosztika nem teszi szükségessé az antikoagulánsok időközbeni megvonását[9]. Phlebográfiás kontrollt felhasználva még heparinkezelés közben is megmaradt 50 % pozitivitás, mig a Warfarin-kezelés 5. napjáig 61 %, további napjaikban pedig 40 %-os volt a pozitivitás.

Eredményeink értékelésénél még egyszer fel szeretnők hivni a figyelmet arra, hogy a friss thrombus kimutatása szempontjából ez idő szerint bizonyitó phlebographiát már csak a betegek kimélete érdekében sem végeztünk, és betegeink szerencsére szekcióra sem kerültek. Igy fennállhat a lehetősége anyagunkban az általunk megadottnál nagyobb számu tünetmentes thrombuselőfordulásnak is. Ez azonban mondanivalónkon, a folyamatos kritikus észlelés szükségességén mit sem változtat.

ÖSSZEFOGLALÁS

A praktikusan sulytalan mennyiségben bevitt radiofibrinogén beépülési dinamikájának egyszerü módon való nyomonkövetésével értékes diagnosztikus eljáráshoz jutottunk a mélyvénás thrombózisok diagnosztikájában. A módszer jelentőségét még csak fokozza, hogy egyidejüleg lokalizálásra is módot nyujt. Mint minden eszközös diagnosztikai eljárásnál, itt is fontos a kritikus klinikai mérlegelés, és mondanivalónkkal a pangásos alszárvizenyőben szenvedők révén éppen gyakorlati példát kivántunk szolgáltatni arra, hogy az események megitélésében a hangsulyt mennyivel inkább a kumuláció dinamikájának alakulására, mintsem merev diszkriminációs értékekre kell fektetni.

IRODALOM

1. *M. Kučera*, Czechosl. Med. 14 /1968/ 50
2. *I.L. Spar*, et al., Arch. Surg. 92 /1966/ 752
3. *E. Regőczi*, J.Nucl. Biol. Med. 15 /1971/ 37
4. "Humán szérumfehérjék radioizotópos jelzése és anyagcseréje" kerekasztalkonferencia a Balatonfüredi Állami Szivkórházban, 1971. VI. 12, Moderator dr. Horváth Mihály
5. *V. V. Kakkar*, et al., The Lancet 1970, 1, 540
6. *P. Atkins, L. A. Hawkins*, Brit. J. Surg. 55 /1968/ 825
7. *C. Flanc, V. V. Kakkar, M. B. Clarke*, Brit. J. Surg. 55 /1968/ 742
8. *J. R. O'Brien*, The Lancet, 1970, 2, 396
9. *N. L. Browse*, et al., Brit. Med. J. 4 /1971/ 325
10. *K. Yeyasingh*, et al., The Lancet 1970, 2, 294
11. *A. Larcan, J. F. Stoltz*, Microcirculation et hemorhéologie. Masson et Cie, 1970, 179, 182, 185. o.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/370-374

IN VITRO PAJZSMIRIGYMŰKÖDÉS-VIZSGÁLATOK

Földes J. , Piroska E., Gesztesi E., Takács J.-né.
Semmelweis Orvostudományi Egyetem I.sz. Belklinikája, Budapest

A "szabad" jelzett hormon meghatározása ioncserélő gyantával. Közvetlen hormonmeghatározás: kiszoritásos analizis, a szérum trioxintartalmának meghatározása, az ETR vizsgálata, a szérum TSH-tartalmának radioimmuno-assay-vel végzett meghatározása.

Исследование функционального состояния щитовидной железы в условиях in vitro
Фёльдеш, Я., Пирошка, Э., Гестеши, Э., Такач, Я.из
Определение "свободного" меченого гормона ионно-обменной смолей. Непосредственное определение гормона: анализ вытеснения, определение содержания тироксина в сыворотке, изучение ЭТР, определение содержания ТСГ с помощью радиоиммуноэссе.

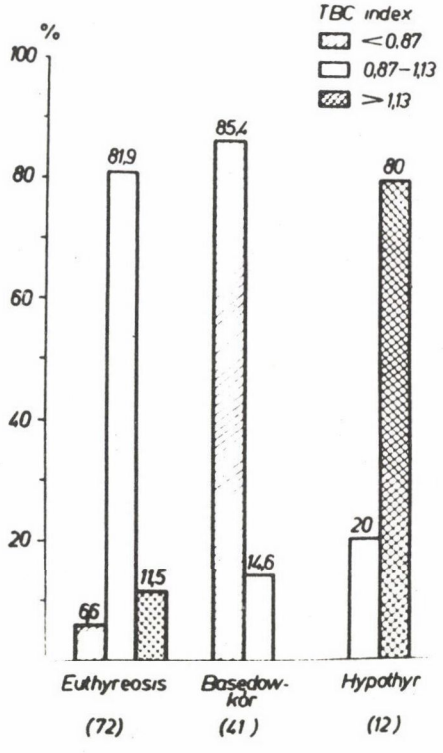
In Vitro Investigation of Thyroid
Földes, J., Piroska, E., Gesztesi, E., Mrs. Takács, J.
Determination of "free" labelled hormone by ion exchange. Direct hormone determination: displacement analysis, determination of thyroxine content in serum, investigation of ETR, determination of TSH content in serum by radioimmunoassay.

A radioizotóp-felhasználáson alapuló in vitro pajzsmirigyvizsgálatok az utóbbi években mindinkább tért hóditanak. Az első módszert Hamolsky 1957-ben irta le, és azóta ez a teszt a rutin diagnosztikus vizsgálatok közé tartozik. A próba végzésekor közvetett módon a pajzsmirigyhormont kötő fehérjék szabad kapacitását határozzuk meg, és elsősorban a szérum TBG-nek a jelzett-T_3-at kötő képességét mérjük. Az in vitro módszer nagy előnye, hogy jódos kontamináció az eredményt nem befolyásolja. A betegnek nem kell radioizotópot adni, igy a vizsgálatot gyermekeken és terheseken is elvégezhetjük.

A vörösvérsejtek jelzett-T_3-felvételére azonban a pajzsmirigybetegségeken kivül egyéb kórokok és gyógyszerek is hatnak. A vizsgálati eredményt elsősorban a hypalbuminaemiával, dysproteinaemiával, haematokrit eltéréssel járó megbetegedések befolyásolják. A tesztet standard körülmények között kell végezni. A vörösvérsejtek jelzett T_3-felvételére számos vizsgálati körülmény is hat, mint a vér pH-ja, a haematokrit a vörösvérsejtek tárolása és károsodása, a vörösvérsejtek mosásának a technikája. Ezért a továbbiakban a passziv indikátor szerepét betöltő vörösvérsejtek helyett az un. "szabadon" maradt jelzett hormon megkötésére gyantát vagy aktivált szenet ajánlottak, illetve gélfiltrációs módszert használtak. Az utóbbiról megelőzően beszámoltunk, és

e vizsgálattal jó eredményeket kaptunk. E módszer hátránya azonban, hogy nagyon idő- és munkaigényes.

Ujabban - egyszerü kivitelezhetősége miatt - mindinkább elterjedt a szérumfehérjék által meg nem kötött, un. "szabad" jelzett hormon felvételére az ioncserélő gyantát alkalmazó módszer. A beteg szérumát pufferben oldott jelzett T_3-mal hozzuk össze, majd ehhez másodlagos kötőként gyantát teszünk. A szérum tiroxinkötő fehérjéi telitettségi fokuknak megfelelően megkötik a jelzett T_3-at, mig a szabadon maradt jelzett hormont a gyanta veszi fel. Az egyes módszerek a továbbiakban, egymástól abban különböznek, hogy vagy a gyanta, vagy a szérum radioaktivitását határozzuk meg. Ma már több gyári készitmény /kit/ áll rendelkezésre, melyek közül a Res-O-Mat T_3-at /Mallinckrodt/ használtuk.

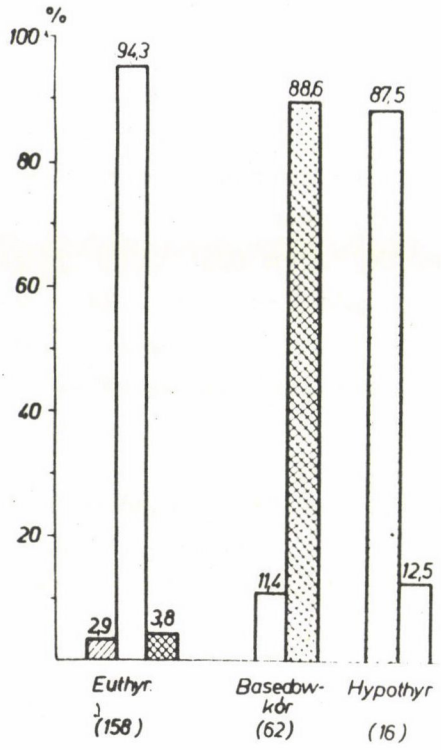


1. ábra

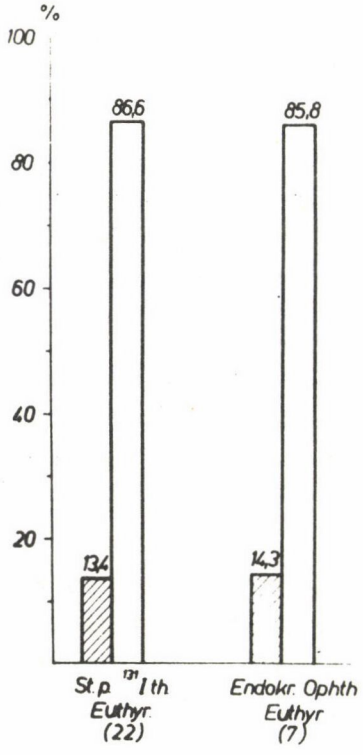
Az eredményt, mint "tiroxinkötő képesség" /TBC-index/ adjuk meg. Euthyreosisban ennek értéke 0,87 - 1,13. Hyperthyreosisban < 0,87, hypothyreosisban viszont > 1,13. Az ábrán közölt adataink arra utalnak, hogy a vizsgálattal kapott eredmények körülbelül azonosak a Hamolsky-tesztével és lényegében megegyeznek Goolden, Thorson, valamint Hoster és Klein megfigyeléseivel.

Az eddig emlitett módszerek mind a szérumfehérjék pajzsmirigyhormont kötő képességén alapulnak. Sokkal nagyobb jelentősége van azonban a közvetlen hormonmeghatározáson alapuló in vitro módszereknek.

A szérum tiroxintartalmát többnyire a "kiszoritásos analizis elvén" alapuló módszer segitségével határozzák meg. Elsőnek Ekins irta le ezt a metódikát, majd Murphy és Pattee fejlesztette tovább, és hazánkban Bános és munkatársai alkalmazták sikeresen. E módszert továbbfejlesztették, egyszerüsitették, és elvégzéséhez ma már gyári készitmények /kitek/ állnak rendelkezésre. Vizsgálatainkhoz a Res-O-Mat T_4 kitet /Mallinckrodt/ használtuk. E módszerrel euthyreosisban a szérum össztiroxintartalma 5-13,7µg/ml-nek adódik. Hypothyreosisban ez alatti, hyperthyreosisban e feletti értékeket kapunk. Amennyiben az eredményt tiroxin-jódban akarjuk kifejezni, ugy a vizsgálatkor kapott értéket 0,653-mal megszorozzuk.



2. ábra



3. ábra

Mint a 2. ábrán látható, az adott módszerrel a szérum tiroxintartalmát euthyreosisos beteganyagban 94%-ban normálisnak, kezeletlen Basedow-kórosokban pedig az esetek 88%-ában emelkedettnek, mig hypothyreosisban 87%-ban alacsonyabbnak találtuk.

Radiójódterápia után vagy endokrin ophthalmopathiában sokszor nehézséget jelent a pajzsmirigy müködési állapotának a meghatározása.

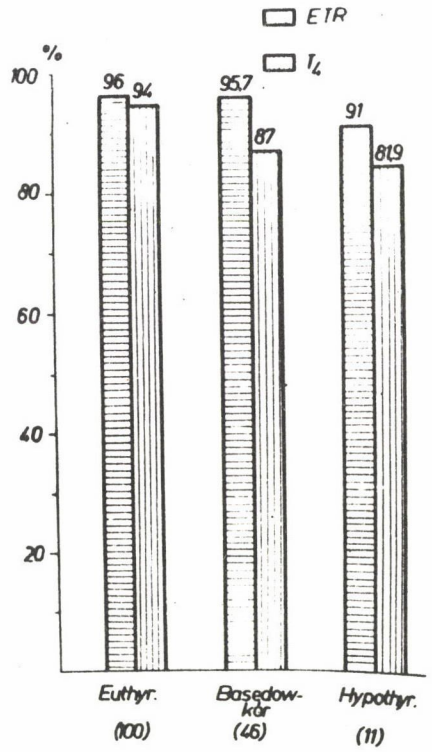
Mindkét esetben az euthyreosisos állapot ellenére nagy lehet a thyreoidea radiojód-felvétele, illetve a plazma radioaktivitásának meghatározásán alapuló vizsgálat értéke. Mint a 3. ábrából látható, mindkét esetben nagy segitséget jelent a szérum tiroxintartalmának a meghatározása: euthyreosisban a szérum tiroxinkoncentrációja normális.

A teszt alapfeltétele a normális szérum tiroxidkötő képesség. Igy pl. terhességben és orális antikoncipiensek szedésekor - amikor a szérum TBG-tartalma növekszik - a szérum tiroxintartalma is nagyobb.

A teljesség kedvéért megemlitjük, hogy az utóbbi időben a szérum tiroxintartalmának radioimmunoassay-vel történő meghatározását irták le, és ezt a módszert mindkiterjedtebben alkalmazzák. Ugyancsak nagy jelentőségünek látszik a szérum trijódtironin tartalmának in vitro meghatározása; e módszer alkalmazása vezetett az un. trijódtironin-toxikózis klinikai képének a felismeréséhez, mely magyarázatul szolgál a normális szérum tiroxin tartalmu hyperthyreotikus esetek megitélésében.

A klinikai képpel sokkal jobban egyezik a szérum un. "szabad" tiroxintartalma, mint az össz-tiroxin koncentrációja. A "szabad" tiroxinmennyiséget nem befolyásolják a szérumfehérjékben bekövetkező változások. A szérum "szabad" tiroxintartalmának meghatározása azonban nehézkes, ezért helyette már évekkel ezelőtt bevezették az un. "szabad tiroxin index"-nek a fogalmát, melyet mi is sikeresen alkalmaztunk.

A "szabad tiroxin nehézkes meghatározása helyett, vagy a két vizsgálatot igénylő "szabad tiroxinindex" helyett vezették be ujabban az "effective thyroxine ratio" /ETR/ vizsgálatot, melynek értéke ugyancsak arányos a szérum "szabad"tiroxintartalmával. A teszt végzésekor lényegében meghatározzuk a fehérjekötésből szabaddá tett szérum össztiroxin-tartalmát a "kiszoritásos analizis elve" alapján, ugyanakkor a vizsgált szérum kis mennyiségének /5µl/ hozzáadásával tekintetbe vesszük a TBG hormonkötő képességét is. E módszerrel kiiktatjuk a legtöbb in vitro pajzsmirigymüködés-vizsgálat hátrányát, nevezetesen a TBG-változástól való függőségét. A vizsgálatot a rendelkezésre álló gyári készitmény segitségével /Res-O-Mat ETR kit/ könnyel elvégezhetjük.



4. ábra

A 4. ábrán az ETR és tiroxin kittel kapott, 157 egyénen végzett összehasonlitó vizsgálati eredményeinket mutatjuk be. Mint látható, mind a két vizsgálat alkalmas a pajzsmirigy müködési állapotának a meghatározására; az ETR-rel kapott eredmények kissé jobbnak bizonyultak.

Antikoncipiensek szedésekor gyakran emelkedett a szérum össztiroxintartalma. Az oestrogenek ugyanis növelik a szérum TBG-mennyiségét. Adataink szerint ezekben az esetekben a szabad tiroxinkoncentrációval arányos ETR-érték alkalmas a pajzsmirigy valódi müködési állapotának a megitélésére. További megfigyelések hivatottak eldönteni, hogy az ETR-vizsgálat mennyire alkalmas a pajzsmirigybetegségek terápiás hatásának a követésére.

Végül e helyen röviden megemlitem, hogy a szérum TSH-tartalmának radioimmunassay-vel végzett meghatározása /mely ugyancsak in vitro módszer/, mennyire alkalmas a primér és szekundér hypothyreosis elkülönitésére.

1. táblázat

Diagnózis	Se. Thyroxin µg/100ml		
	<5	5 — 13,7	>13,7
Euthyr. anti-concip. th. (20)	—	12	8
	ETR		
	< 0,86	0,86—1,13	> 1,13
	—	19	1

A 2. táblázaton bemutatjuk Meréteivel és Kocsárral végzett vizsgálataink eredményeit. Ezek arról tanuskodnak, hogy primér hypothyreosis minden esetében emelkedett a szérum TSH-tartalma.

Összegezve megállapithatjuk, hogy az in vitro módszereknek, és közöttük is elsősorban a közvetlen hormonmeghatározáson alapuló módszereknek mind nagyobb szerep jut a pajzsmirigy müködési állapotának a megitélésében. Egyik vizsgálat eredménye sem tekinthető 100%-osnak, ezért célszerü egyidejüleg többfajta vizsgálatot végezni.

2. táblázat

Diagnózis		Se. TSH-tartalom	
		<5 µE/ml	>5µE/ml
Pr. Hypothyr.	eset (20) átlag µE/ml szórás	— — —	20 156 µE/ml 24—618
Sec. Hypothyr.	eset (4) átlag µE/ml szórás	3 <5 µE/ml —	1 5,4 µE/ml —

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/375-377

ETR VIZSGÁLATOKKAL SZERZETT TAPASZTALATAINK

Hernády T., Mártonffy K., Biró K.
Semmelweis Orvostudományi Egyetem Radiológiai Klinikája, Budapest

Az ETR-kit /Mallinckrodt/ 82,2 %-ban adott hü eredményt. Az irodalmi 98%-tól ez valószinüleg méréstechnikai okból tér el. Trijódtiroxinnal kezelt hypothyreotikusoknál kórosan kis, D-tiroxinkezelés során hamisan nagy az ETR értéke

Опыт при исследовании ЭТР
Хернали, Т., Мартонфи, К., Биро, К.
При исследовании кита ЭТР были получены правильные результаты в 82,2%. Значение отличается от заданного в литературе значения 98% из-за метрологических причин. У нипертиреотиков, леченных трийодотирониниом хронически низки-, при лечении их Д-тироксином ложно высоки- величины ЭТР.

Experiences with ETR Tests
Hernády, T., Mártonffy, K., Biró, K.
The Mallinckrodt ETR kit gives accurate results in 82,2%, which deviates from the 98% given in the literature possibly by metrological reasons. Hypothyreotics under triiodothyroxine treatment have chronically low, those under D-thyroxine tratment have falsely high ETR values.

A pajzsmirigyhormonoknak az anyagcserére gyakorolt hatása igen sokrétü. Mai tudásunk szerint a hordozófehérjéhez nem kötött, un. szabad T_3 /trijódtironin/ és T_4 /tiroxin/ szabályozza az anyagcserét, s felelős a hiper-, hipo- vagy euthyreosisért, és igy a kórisme felállitásában a T_3 és T_4 kvantitativ meghatározása igen fontos.

A szérum T_4-koncentráció és tiroxinkötő globulin /TBG/ kapacitásának az un. T_3- és T_4-kitekkel történő meghatározása ismert. Ahhoz, hogy pontos képet kapjunk, ugyanazon betegnél mind a T_3-, mind a T_4-vizsgálatot el kell végeznünk, mert a TBG mennyisége mindkettőt befolyásolja, de ellentétes irányban. A két mérés eredményét veszi tekintetbe a "szabad T_4 index", mely kb. 98 %-os pontosságu.

Thorson és munkatársai uj eljárást dolgoztak ki a szöveti hormonszint meghatározására. Az uj eljárás célja, hogy a vizsgálatot a TBG mennyiségétől függetlenitse és egyszerüsitse. Figyelembe véve, hogy egyre többen szednek fogamzásgátló tablettát, valamint hogy éppen terhesanyák pajzsmirigyvizsgálatánál igen fontos az in vitro vizsgálat, nagy jelentőségü az un. ETR-kit bevezetése.

Az ETR elnevezés az "effective thyroxin ratio" röviditése; a kitet a Mallinckrodt Chemical Works /USA/ gyártja. A vizsgálandó személytől alvadásgátló hozzáadása nélkül vért veszünk, majd centrifugálás után 1 ml szérumból etanollal kivonjuk a T_4-t. A kit tartalmaz ^{125}I-T_4-gyel telitett normál szérumot, ahol tehát a TBG teljesen le van kötve ^{125}I-T_4-gyel. Ehhez hozzáadjuk a vizsgált szérumból extrahált T_4-et, mely a "competative protein - binding analysis" szerint mennyiségével arányos ^{125}I-T_4-et szorit le a TBG-ről. Ehhez a rendszerhez még hozzáadunk egy, a vizsgálandó szérummal megtöltött mikrokapillárist. Ilyenformán jelen van a vizsgálandó személy TBG-je, mely kötési kapacitásának megfelelő ^{125}I-T_4-et vesz fel. Az igy fel nem vett ^{125}I-T_4-et a rendszerhez hozzáadott speciális ioncserélő gyantacsik /Res-O-Mat Strip/ köti meg. Mérjük az egyensulyi helyzet kialakulása és a gyanta eltávolitása után a rendszerben lévő ^{125}I aktivitását, s ezt biztosan euthyreotikus személy ugyanilyen módon kezelt szérumának aktivitásával hasonlitjuk össze.

A kontroll szérum aktivitását osztva a vizsgált szérum aktivitásával az ETR-nek nevezett viszonyszámot kapjuk, mely 0,86 - 1,13 érték közt euthyreoid, ez alatt hypothyreoid, efelett hyperthyreoid állapotot tükröz.

29 pajzsmirigybetegségben nem szenvedő, illetve egészséges egyén ETR értéke laboratóriumunkban is az irodalomban megadott 0,86 - 1,13 érték közé esett, egy alkalommal 0,64-et, illetve 0,81-et mértünk, és egy esetben 1,14-et.

Elemeztük, hogy a kétfázisu ^{131}I-dal végzett pajzsmirigyvizsgálat és a ^{125}I-ETR vizsgálat adatai mennyire egyeznek. Mindkettő egyértelmüen hiperfunkcióra utalt 17, hipofunkcióra 3, normofunkcióra 8 betegnél.

^{131}I-vizsgálat alapján jódéhesnek bizonyult 25 beteg, ebből 18-nál az ETR a szövetek normális hormonellátottságát tükrözte, mig 5 esetben az ETR hipofunkciós értéket mutatott. Négy betegnél jódexpozició folytán a ^{131}I-felvételi értékek igen kicsik voltak, az ETR mindegyiknél euthyreoid tartományba esett, s a betegek klinikailag sem bizonyultak hypothyreotikusoknak.

Egy esetben pajzsmirigymütétet követően a pajzsmirigy szokásos helyén és a koponyán az occipitalis területen tudtunk szcintigráfiával jódot kötő pajzsmirigyszövetet kimutatni. A ^{131}I-felvételi görbét természetesen a nyak felett végzett mérésekből rajzoltuk fel. Feltünő volt, hogy az igen kis %-os jódfelvételhez relative és abszolute is extrém nagy, 1,21 % dózis/l/48 órás organikus szérumaktivitás társul. A kapott értékeket egyrészt a csökkent jódtér syndroma, másrészt ectopiás pajzsmirigyszövet magyarázza. A perifériás fázis normális volt, az ETR az euthyreoid tartományba esett. Egy betegnél találtunk igen erősen csökkent jódtér mellett hypothyreosisra jellemző ETR értéket, mely a klinikai képpel egyezett.

Miután autonom adenománál egyéb, a szövetek hormonellátottságát tükröző adat hiányában a klinikum nem bizonyit sem az ETR mellett, sem ellene, ezen adatokat a továbbiakban nem elemeztük.

Hasonlóképpen nem értékeltük azon ETR adatokat, amelyekhez nem állt rendelkezésre a ^{131}I-felvételi görbe.

Összesen 166 ETR-vizsgálatot végeztünk, ebből a párhuzamos meghatározások közül csak az egyik adatot vettük figyelembe.

Összesen 101 ETR-meghatározás adatait elemeztük. A ^{131}I-felvételi görbével és a klinikummal az ETR 18 esetben nem egyezett. Igy 6 hiperfunkciós betegnél az eredmény euthyreoid, 3-nál a hypothyreoid tartományban volt, mig a normofunkciós betegeink közül az ETR 2-nél hipofunkciót, 1-nél hiperfunkciót mutatott.

Ezen első vizsgálatsorozatunknál 82,2 %-ban kaptunk helyes, a pajzsmirigy müködését hüen tükröző eredményt, igy az irodalomban közölt 98 %-os találati valószinüséget nem értük el. Meggyőződésünk, hogy ennek méréstechnikai oka volt, hiszen rendkivül kis aktivitásu ^{125}I minták mérésének beállitásáról volt szó.

Összefoglalva elmondhatjuk, hogy az ETR-kit a pajzsmirigyvizsgálat un. szöveti fázisának meghatározására igen alkalmas, könnyen kivitelezhető, és a párhuzamosan végzett T_3 és T_4-kitvizsgálatokat helyettesiti. Segitségével jelentős munkát lehet megtakaritani. Az ETR-t a TBG mennyisége nem befolyásolja. Hátránya, hogy a trijódtironinnal kezelt hypothyreotikus betegeknél kórosan kis értéket ad, még akkor is, ha a hormonadagolás kielégitő. D-tiroxinkezelés során pedig hamisan nagy az ETR számértéke. Egyéb gyógyszer az eddigi adatok szerint az eredményt nem befolyásolja.

Az irodalmi adatok szerint mind a gyógyszeres, mind a ^{131}I-kezelés hatásosságának megitélésében az ETR ugyanolyan megbizhatónak látszik, mint a T_3, T_4 és a szabad T_4.

A vizsgálat kivitelezésének előfeltétele a megbizható mérőberendezés.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/378-386

^{131}I-TIROXIN ÉS ^{131}I-TRIJODTIRONIN STABILITÁSÁNAK VIZSGÁLATA ÉS A RADIOLITIKUS BOMLÁS BEFOLYÁSA EGYES DIAGNOSZTIKUS TESZTEKRE

Reviczky A., Szántó L.
Országos Reuma- és Fizioterápiás Intézet, Budapest

A tiroxin dejódozottságának az időtől, a vizes oldószer dielektromos állandójától való függése. A jelzés helye befolyásolja a teszt eredményét. A trijódtironin jódleadása kevésbé függ e tényezőktől.

Исследование стабильности ^{131}I-тироксина и ^{131}I-трийодтиронина и влияние их радиолиза на результаты отдельных диагностических проб
Ревицки, А., Санто, Л.
Зависимость дейодирования тироксина от времени, от диэлектрического постоянного водяного растворителя. Место метки влияет на результат пробы. Степень дейодирования трийодтиронина значительно меньше зависит от этих факторов.

Investigation on the Stability of ^{131}I-Thyroxine and ^{131}I-Triiodothyronine and the Influence of Radiolytic Degradation on Some Diagnostic Tests
Reviczky, A., Szántó, L.
Dependence of deiodization of thyroxine on the dielectric constant of aqueous solvent and on time. Results of the test are influenced by the place of labelling. Deiodization of triiodothyronine less depends on these factors.

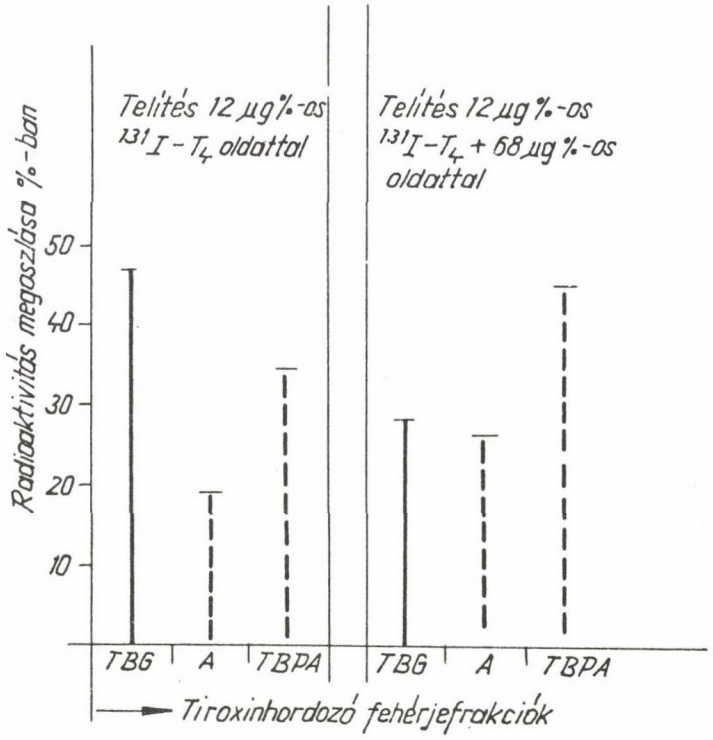
A vérsavóban a pajzsmirigyhormonokat három fehérjefrakció szállitja: a TBG, a TBPA és a TBA. Ezek együttesen képezik a tiroxin-binding-protein-t: a TBP-t. A pajzsmirigy-megbetegedések diagnosztikájában fontos támpont ezen fehérjefrakciók hormonokkal való ellátottsága, illetve exogén hormonokkal való további telithetősége.

Ennek a speciális, hormont szállitó feladattal rendelkező fehérjefrakciónak a természetéről annyit szeretnék megemliteni, hogy a tiroxinnak a tiroxint kötő globulinhoz /TBG/ való affinitása a legerősebb, és ez a hormonszállitásban kb. 60 %-ban vesz részt. A tiroxint kötő prealbumin /TBPA/ már gyengébben köti a tiroxint, és annak kb. 30 %-át szállitja. Végül a tiroxint kötő albumin kötődési hajlamai a leggyengébbek, a tiroxin szállitásában csak 10 - 15%-ban részesedik. A másik, igen aktiv pajzsmirigyhormonnak, a trijódtironinnak kapcsolódási viszonyai a tiroxinétól eltérnek, mert bár mindhárom fehérjefrakcióhoz kötődik, ez a kötés a tiroxinénál lényegesen gyengébb, ami azt jelenti, hogy a tiroxin képes a trijódtironint a bekötődés helyéről kiszoritani, és kisebb affinitásu kötőhelyre transzponálni, mint pl. a TBG- ről a TBPA-ra;

viszont a trijódtironinnal telithetők mindazon kötőhelyek, amelyeket az endogén tiroxin nem foglalt el, anélkül, hogy a tiroxin kiszoritásának veszélye merülne fel.

Frakcionált, illetve globális meghatározhatóságuk is a fenti elvek alapján történik.

Az egyes frakciók hormonfelvevő képességét izotópszaturációs módszer segitségével közelithetjük meg. Intézetünkben a tiroxinszaturációs tesztet Ingbar, illetve Lemarchand-Béraud nyomán adaptáltuk. Telitésre kétféle koncentrációju tiroxinoldatot használtunk. Mindkettő 12 µg % ^{131}I-dal jelzett tiroxint tartalmazott, az egyik vivőanyag nélkül, mig a másik 68 µg % inaktiv tiroxint tartalmazott vivőanyagként. A vérsavórészleteket 1:1 arányban elegyitettük a telitőoldatokkal, a mintákat fél óráig 38°-on inkubáltuk, majd tris-maleinát 8,6 pH-ju pufferben elektroforézist végeztünk a fehérjefrakciók szétválasztására. A frakciókhoz kötött radioaktivitásokat megmértük, és a beütésszámokat az elektroforogram összes radioaktivitásának %-ában fejeztük ki. A stabil tiroxinnal feldusitott - vagy ha ugy vesszük, felhigitott - mintában a radioaktivitás megoszlása a vivőanyag nélküli mintához viszonyitva módosul, mert a TBG-n mért aktivitás bizonyos része a TBPA-ra tevődik át.



1. ábra

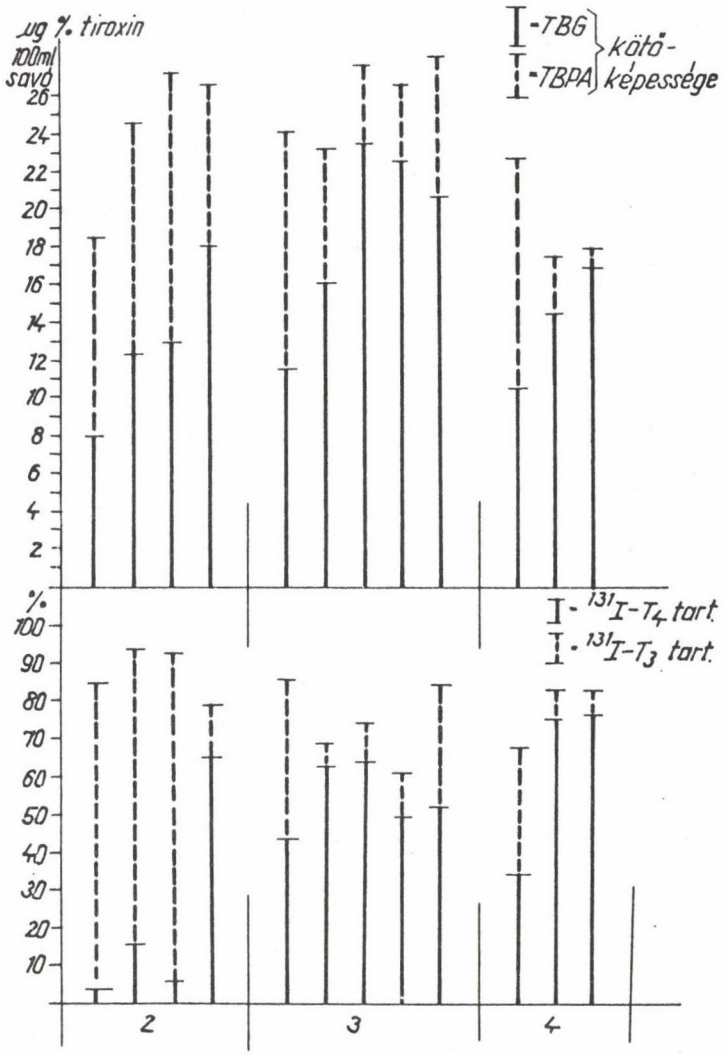
Ha figyelembe vesszük az eddig elmondottakból azt, hogy a tiroxin más arányokban kötődik a fehérjefrakciókhoz, mint a trijódtironin, valamint, hogy a tiroxin egyes fehérjefrakciókból a trijódtironint ki tudja szoritani, továbbá ismerve a tiroxinnak, mint tuljódozott terméknek rendkivüli hajlamosságát a dejodizációra, feltételeztük, hogy a dejodálódás eredményeképpen keletkezett trijódtironin ezuttal is számottevő hibaforrás lehet. Ezért az 1970-es év folyamán kisérletsorozatokat végeztünk.

Az Amersham cégtől származó ^{131}I-dal jelzett tiroxinoldat 9 szállitmányát "életidejének" folyamán több alkalommal felhasználtuk , azaz az 50 %-os propilénglikolban oldott mintát a szaturációs teszthez szükséges módon fiziológiás konyhasóoldattal higitottuk. Ily módon az eredetileg - átlagban - 6,5 µg/ml, 35 µCi/µg fajlagos aktivitásu anyagkoncentráció harmincszorosára higult /ez a koncentráció felelt meg ugyanis a biológiai és mérési viszonyoknak/. Ebből a higitásból mindig ugyanazon kontroll személy vérsavójával végeztük az egyes fehérjefrakciók tiroxintelitését. A pajzsmirigymüködés változatlanságát a vérfehérjékhez kötött szervesjód-értékek meghatározásával esetenként ellenőriztük. A higitott minta mindenkori tiroxin- és trijódtironin-tartalmát papirkromatográfiás szétválasztás után állapitottuk meg.

A tiroxinszállitmányok bomlottságának vizsgálatainkra gyakorolt hatását a 2. ábrán mutatjuk be.

Az ábra kettős. A vizszintes tengelyen annak a hónapnak sorszámait tüntettük fel, amelyekben a tiroxin érkezett, illetve a vizsgálatok folytak, a hónapokon belül egy-egy oszlop az egyes feldolgozásokat jelöli. Az alsó oszlopsor kihuzott része a minták tiroxin-, mig a szaggatott része a trijódtironin-tartalmáról tájékoztat. A táblázat felső oszlopsora mindig a megfelelő alsó mintának feldolgozási eredményét mutatja. A kihuzott vonalrész a TBG-hez kötött aktivitásnak, a szaggatott vonal a TBPA-hez kötődő aktivitásnak megfelelő tiroxin mennyiségét jelzi (µg/100 ml vérsavóra vonatkoztatva). Sajnos, arra mód nem volt, hogy az elektroforogramokon a tiroxin és trijódtironin megoszlását kimutassuk, de az adatok igy is jól tükrözik azt, hogy amilyen mértékben dejodizálódik az eredeti minta tiroxin-trijódtironinja, ugy mutatható ki a kötődés eltolódása a TBG-ről a TBPA-ra.

Mivel a tiroxint szállitó cég az anyagkoncentráción kivül csak a fajlagos és összesaktivitást adja meg egy bizonyos határnapon, de arról nem tájékoztat, hogy a készitményt mikor állitotta elő, vagy a szállitásig már mennyi ideig tárolta, sem pedig a köztudottan bomlékony tiroxinoldat tiroxin-trijódtironin megoszlásáról nem nyujt felvilágositást, a tesztanyag dejódozottságát egyaránt irhatjuk az előtárolás vagy pedig a szállitási hőmérséklet rovására. Ennek kideritése további vizsgálatokat igényelne, amelyek csak a szállitó cég szakavatott segitségével oldhatók meg.

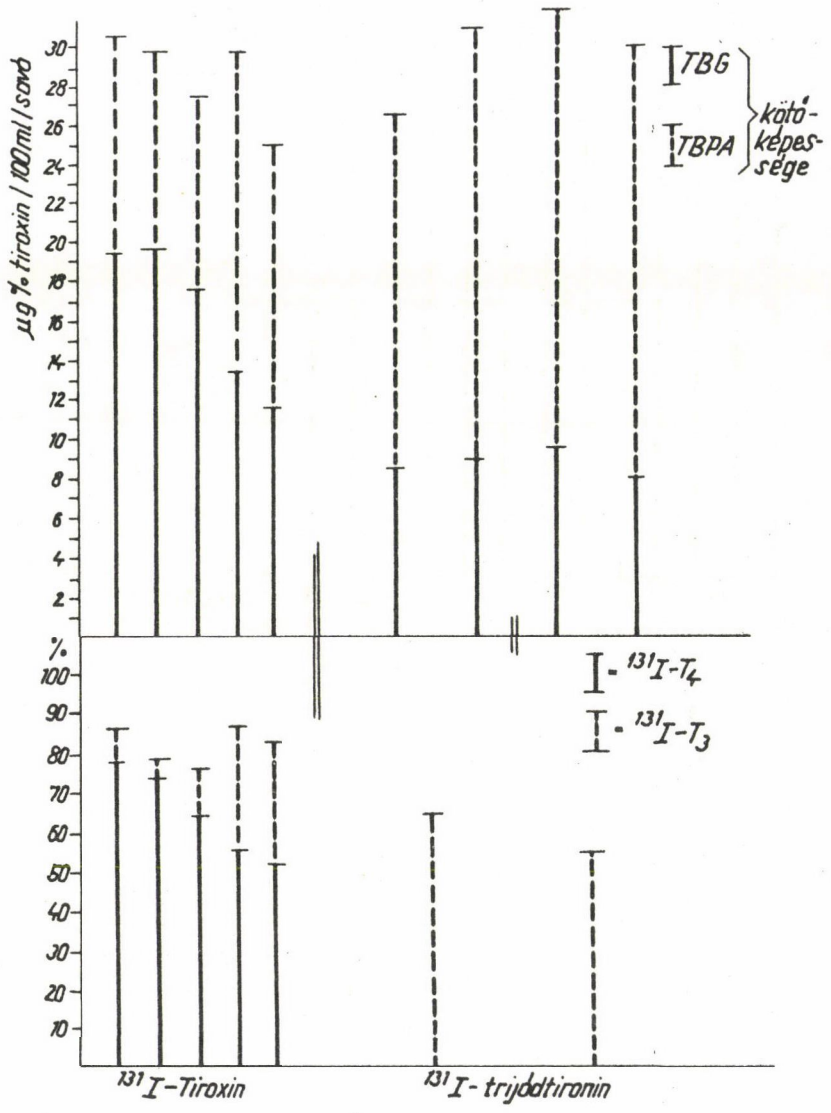


2. ábra

Mindenesetre már az eddigiek alapján felvethetjük azt a felhasználói kívánságot, hogy bomló anyagoknál, pl. esetünkben a tiroxinoldatnál a szállítási specifikációnak az eddig feltüntetett adatokon kivül tartalmaznia kellene a bomlatlan és bomlott aktiv molekulák /tiroxin-trijódtironin/ %-os megoszlását is. Egyébként a tesztanyag biológiai-fiziológiai használhatósága kérdésessé válik.

A 2. ábrán ismertetett megfigyelésünk igazolására kontrollkisérletet végeztünk, amelynek eredményeit a 3. ábrán mutatjuk be.

Az egymás fölé helyezett két koordinátarendszer ismét a telitő anyag és a biológiai teszt eredményeinek összefüggését mutatja. A bal oldalon az alsó rész egy 1971-ben szállitott, ^{131}I-dal jelzett tiroxinoldat öt alkalommal végzett vizsgálati eredményeit mutatja; a felső részen a kihuzott fekete oszlopok ugyanazon kontroll személy vérsavójában a TBG-n megkötött tiroxin mennyi-

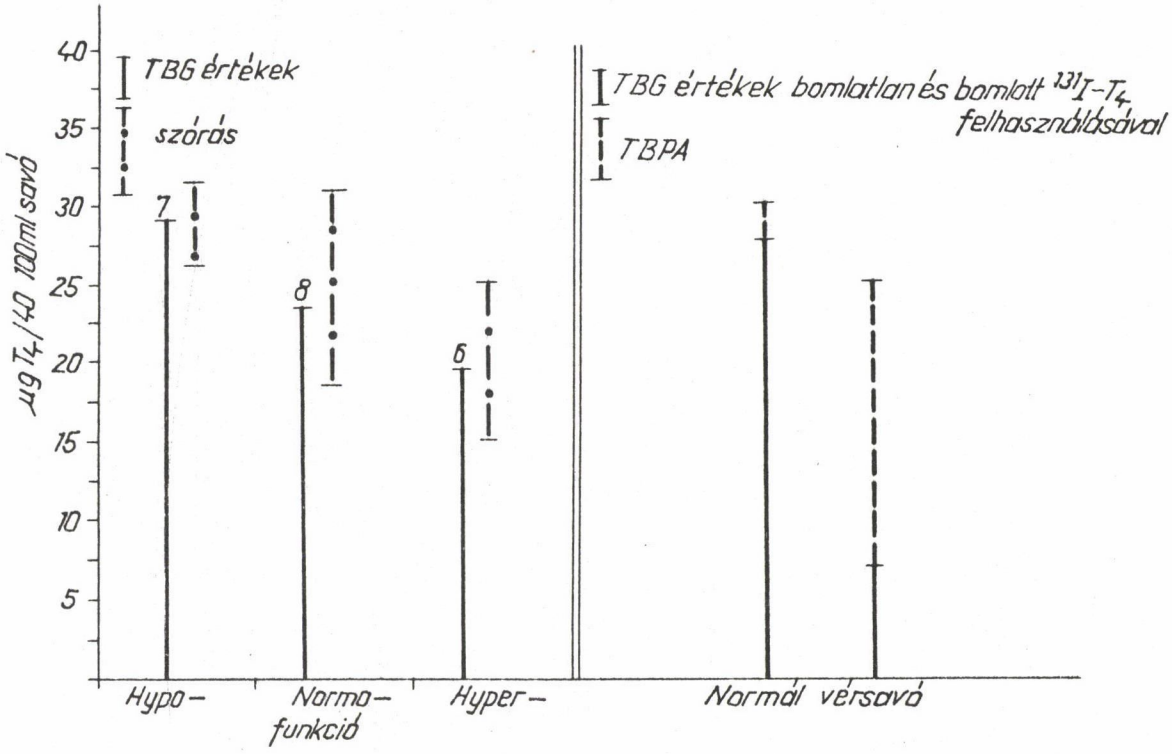


3. ábra

ségét szemléltetik, amely a tiroxintartalommal arányosan csökken, mig a TBPA-kötő képessége - szaggatott vonallal jelezve - a minták trijódtironin tartalmával párhuzamosan nő. Az ábra jobb oldalán levő adatok ennek a kisérletnek a kontrollját adják. Ezuttal ugyanazon vérsavó telitéséhez radioaktiv tiroxin helyett ^{131}I-dal jelzett trijódtironint használtunk fel. Az alsó rendszerben a szaggatott oszlopok a trijódtironin-tartalmat szemléltetik, amelyet kromatográfiásan ellenőriztünk, mig a felső részen a kihuzott oszlopok a TBG-n, a szaggatott vonalak a TBPA-n megkötődött radioaktivitásból kiszámitható kötőképességet mutatják. A TBG trijódtironin-kötő képessége kicsi, a TBPA-é pedig jelentősen megnő.

Észleléseinket rövid gyakorlati magyarázattal egészitjük ki. Tudjuk, hogy ebben a tesztben az exogén jódhormon, azaz a hozzáadott tiroxin, a fehérjefrakciókat csak ott teliti, ahol a telitési helyeket az endogén jódhormonok

szabadon hagyták. Tehát az exogén tiroxin kötődése a TBG-re a pajzsmirigy tulmüködése esetén a legkisebb, alfunkciónál a legnagyobb, mig a normál müködés esetén a kettő között van, amint ezt a 4. ábra baloldali oszlopain láthatjuk.



4. ábra

Az ábra, 7, 8, illetve 5 különböző kórformáju személy átlagértékeit /kihuzott vonal/ illetve /szaggatott vonallal/ a szórást mutatja. Az ábra jobb oldalán a 2. ábrán előbb bemutatott normál esetek két szélső értékét mutatja be. A kihuzott vonal a TBG-hez, a szaggatott vonal TBPA-hoz kötődő aktivitásoknak megfelelő tiroxinfelvételt jelzi. Ha az ábrák két oldalát összehasonlitjuk, láthatjuk, hogy tiroxinbomlás okozta változás, vagyis a TBG kötőképességének csökkenése és egyidejüleg a TBPA-frakció felvevőképességének növekedése szignifikánsan nagyobb lehet, mint a kórforma okozta különbségek. Ez azt hiszem, döntően bizonyitja a már ismertetett felhasználói kivánságokat.

A tiroxin-trijódtironin bomlással kapcsolatban rá kell mutatnom egy másik hibaforrásra is, nevezetesen arra, hogy a ^{131}I-dal jelzett tiroxin 50%-os vizes-propilénglikol oldatban érkezik. A propilénglikol dielektromos ál-

landója 35, a vizé 80. B. Nagy Sándorra végzett vizsgálatainkban régebben kimutattuk, hogy a tiroxin dejodizációja az oldószer DK-értékének növekedésével arányosan fokozódik. Kivánatos volna tehát, hogy a jelzett tiroxint szilárd alakban kapjuk, és csak a felhasználó készitse el belőle a számára megfelő higitást.

Kétségtelen hibaforrás az is, hogy a tiroxinmolekulán a jódatomok a jelzett komponensek, igy a tiroxinról leszakadó 5'- helyzetben levő jódatom a biológiai anyagok vizsgálata során aktiv mütermékek keletkezéséhez vezet. A megtévesztő helyzetek kialakulása kiküszöbölhető lenne, ha a tiroxinmolekulát a le nem szakadó szén vagy hidrogén atomon jeleznék.

A vérfehérjék globális telitésére a Hamolsky-teszt nyujt lehetőséget, amellyel a vérfehérjék együttes trijódtironin-felvevőképességét vizsgáljuk.

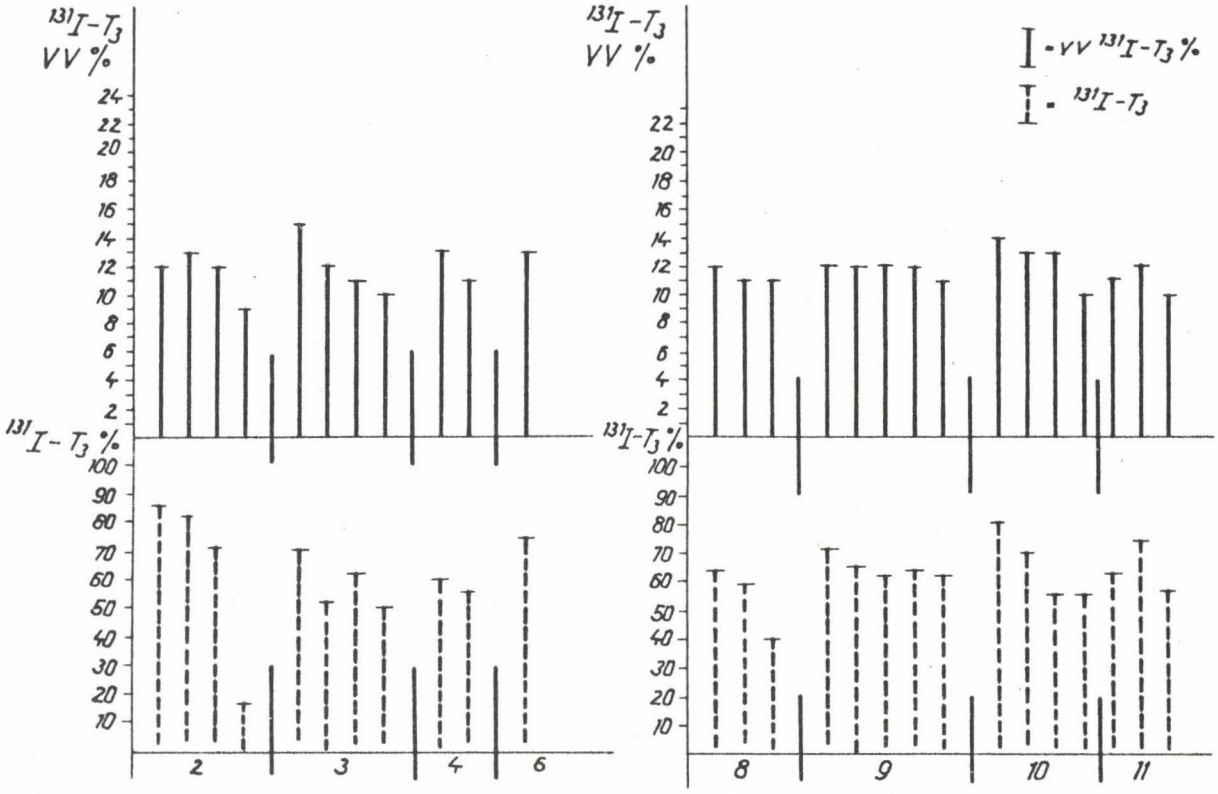
Nyolc szállitmány ^{131}I-dal jelzett trijódtironint is megvizsgáltunk. Átlagban 8,9 µg/ml anyagkoncentrációju oldatot - az előirásoknak megfelelően - százszorosára higitottunk fiziológiás konyhasóoldattal. Ennek az oldatnak egy részletében a tiroxinnál ismertetettek szerint meghatároztuk a trijódtironin-tartalom %-os értékét, a másik részletet a vizsgálandó vérhez adtuk. Inkubálás után megmértük a bruttó radioaktivitást, majd centrifugálás és mosás után a vörös vértestekhez kötődött beütésszámokat a bruttó impulzus/min. értékek %-ában fejeztük ki, és azonos sejtszámra vonatkoztattuk /hametokrit=100/. Ily módon megkaptuk azt a jelzett trijódtironin-mennyiséget, amely *nem* kötődött a vérfehérjékhez, hanem az adszorbensnek használt vörösvértestekhez kapcsolódott.

Az 5. ábra ismét két koordinátarendszert ábrázol; az alsó a tesztanyag jelzett trijódtironin-tartalmának %-os adatait mutatja. Az egyes szállitmányok jelzett anyagtartalma meglehetősen konstans, annak ellenére, hogy a gyártás utáni előtárolás veszélye, a szállitás okozta esetleg káros befolyás, illetve az 50 %-os vizes propilénglikol, mint oldószer, ezuttal is fennáll. B. Nagy Sándorral végzett régebbi vizsgálataink szerint is a trijódtironin jódleadása a közeg DK-viszonyaitól lényegesen kevésbé függ, tehát relativ stabilitása alkalmassá teszi - bizonyos határidőn belül - arra, hogy a vele végzett meghatározások különösebb kétségek nélkül elfogadhatók legyenek.

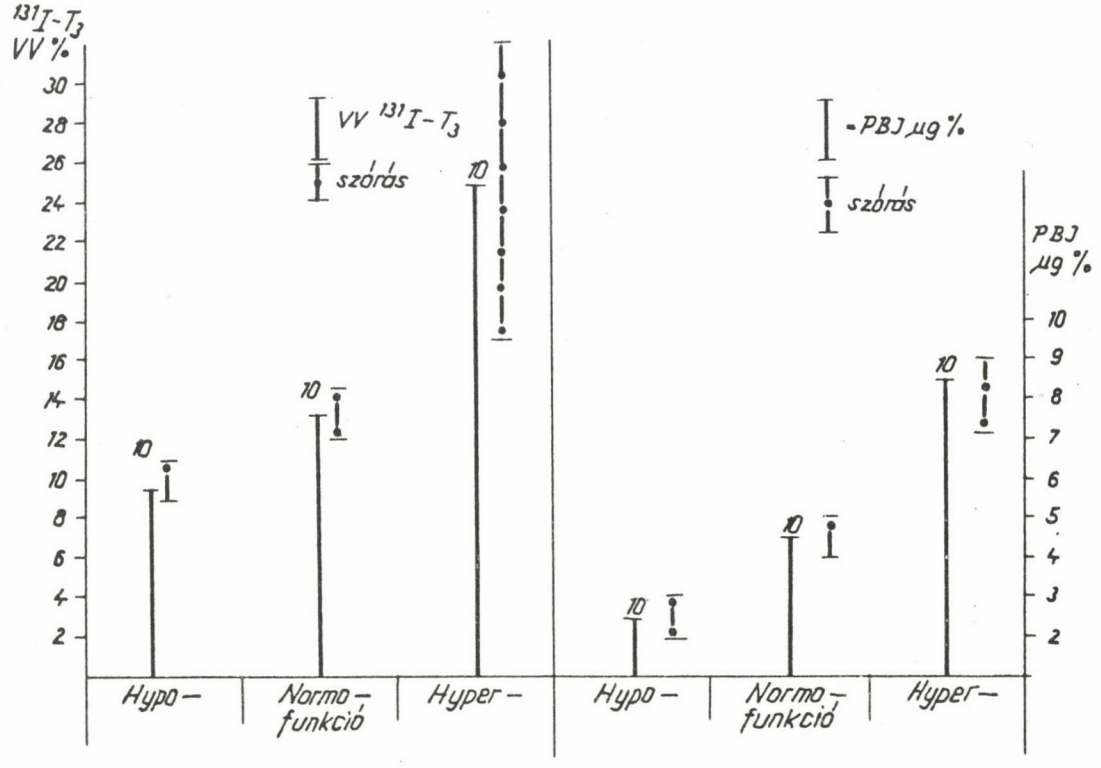
A felső koordinátarendszer a Hamolsky-teszt %-os értékeit mutatja egyugyanazon kontroll személy vérsavójából, akinél a pajzsmirigymüködés zavartalanságát a szérumorganikusan kötött jódértékekkel ellenőriztük. Az ingadozás viszonylag kicsi, és mindvégig a normál zónában történik.

Végezetül a 6. ábrán 10-10 beteg adatát tüntettük fel.

A hypothyreotikus, a normál, illetve a hyperthyreotikus zónák értékei elkülönülnek, átfedést nem találtunk.


131I-T3 VV %
131I-T3 %
2
3
4
6
8
9
10
11
- VV 131I-T3 %
- 131I-T3

5. ábra


131I-T3 VV %
VV 131I-T3
szórás
- PBJ µg %
szórás
PBJ µg %
Hypo –
Normo – funkció
Hyper –
Hypo –
Normo – funkció
Hyper –

6. ábra

Ismeretes, hogy az izotóptechnika alkalmazása lényeges előnyöket és lehetőségeket teremtett az analitikában és az orvosi diagnosztikában egyaránt. De előnyei mellett uj problémák is felmerültek. Nem szabad szem elől téveszteni, hogy a humán diagnosztikában végzett analitikai vizsgálatok során biológiai közegben dolgozunk, amely a radioaktiv tesztanyag esetleges változását felfokozva tükrözi. Mindennapi munkánkból vett példákkal kivántuk ezt bemutatni.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/387-390

TAPASZTALATOK A RADIOIMMUNOASSAY MÓDSZEREK BEÁLLÍTÁSÁNÁL

Merétey K.*, Kocsár L.*, Földes J.**
*Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest
**Semmelweis Orvostudományi Egyetem, I.sz. Belgyógyászati Klinika, Budapest

Agarelektroforetikus gyors eljárás az ellenanyaghoz kötött TSH meghatározására.

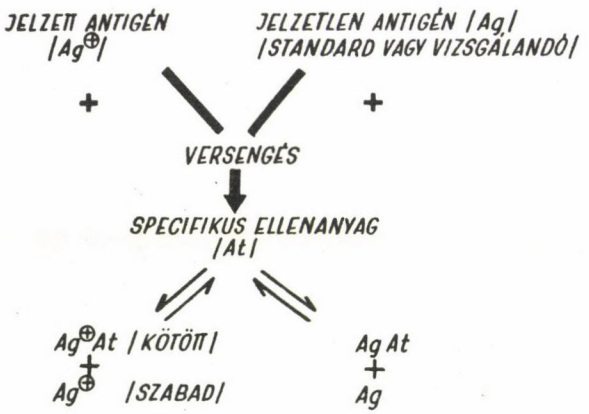
Опыты при установке метода радиоиммуноэссе
Меретеи, К., Кочар, Л., Фёльдеш, Я.
Быстрый агароэлектрофоретический метод для определения привязанного к антителу ТСГ

Experiences with the Adjustment of Radioimmunoassay Methods
Merétey, K., Kocsár, L., Földes, J.
A fast, agaroelectrophoretic method for the determination of TSH, bonded to antigens.

Az immunológia és az egyéb tudományágak között igen fontos határterületet képeznek a radioimmunoassay módszerek vizsgálatával, kutatásával kapcsolatos kisérletek.

A radioimmunoassay módszerek bevezetése különféle anyagok igen kis mennyiségben /10^{-9}-10^{-12}g/ml/ való meghatározását teszik lehetővé. Az ilyen módszer alkalmazása azonban nehéz feladat elé állitja az immunológust, a biokémikust és az izotópmérésekkel foglalkozó szakembert. A feladat nem nehéz akkor, ha standardizált reagensek állnak rendelkezésünkre, ha "kit"-ekkel dolgozunk, de igen nehézzé válik, ha önállóan kezdjük el egy ilyen módszer beállitását.

Az 1. ábra a radioimmunoassay elvét ismerteti vázlatosan. Valamilyen vizsgálandó anyag, antigén /legtöbbször fehérje/ vagy hapten szolgál a rendszerben nyomjelzőként. Ennek fajlagos aktivitása a rendszer számára akkor megfelelő, ha a rendszerben lévő standardhoz viszonyitva elenyésző mennyisége is mérhető. Ez a jelzett anyag /Ag^+/ reagál a specifikusan erre az anyagra



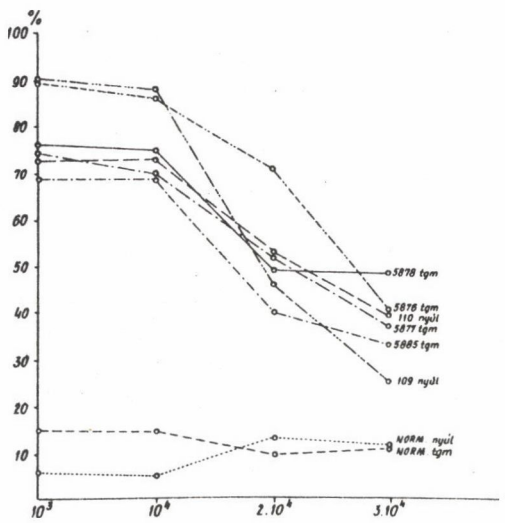
1. ábra

A radioimmunoassay elve

ható ellenanyag-molekulákkal /At/. A reakció eredményeként a radioaktivitás jelentős része az ellenanyaghoz kötötté válik. Különböző mennyiségü jelzetlen azonos specificitásu anyagot /Ag/ adva a rendszerhez, a jelzett antigén ellenanyaghoz való kötődése visszaszorul. Az igy kapott kalibrációs görbe alapján ismeretlen mennyiségü, azonos specificitásu anyagok mennyisége biológiai folyadékokban is jól mérhető.

Uj radioimmunoassay beállitásánál első feladat megfelelő immunszérum előállitása. Legtöbb esetben nehézségbe ütközik megfelelő mennyiségü és minőségü antigén beszerzése vagy előállitása. Ezért igen előnyösek azok az immunizálási eljárások, melyek alkalmazása esetén igen kis mennyiségü antigén bevitele is elegendő megfelelő immunválasz kiváltásához. Igy igen fontos megfelelő adjuvánsok alkalmazása. Legtöbbször u.n. komplett Freund-adjuvánst alkalmaznak, de még hatásosabb különféle tipusu adjuvánsok együttes alkalmazása /pl. Freund-adjuváns + endotoxin vagy Freund-adjuváns + Pertussis-vakcina/. Az adjuvánsok mellett döntően befolyásolja az immunválaszt, hogy hány helyre adjuk be az adott antigénmennyiséget. Sikeresen alkalmazható a talppárnába történő injiciálás, valamint a bőrbe több helyre való antigénadagolás is, a szokásos egyéb eljárások/ i.m., i.p., i.v./ mellett.

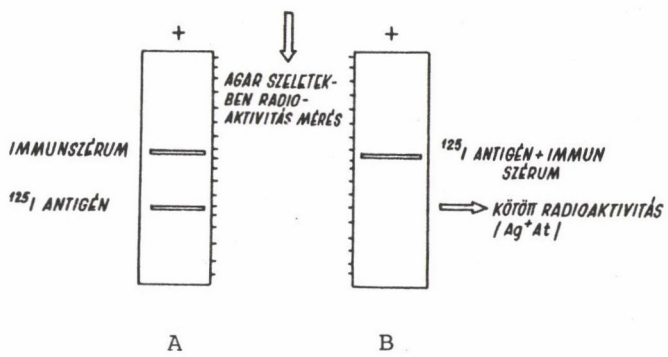
Fontos tény, hogy az immunizáláshoz szükséges antigén immunokémiai tisztasága nem döntő a termelt immunszérum használhatósága szempontjából. Esetleg olyan immunszérum is alkalmazható radioimmunassay vizsgálatokhoz, melyet hasonló, de mégis eltérő antigénnel szemben termeltünk, ha a két rokon antigén között szerológiai keresztreakció áll fenn. Ilyen lehetőségről számolt be Th. Lemarchand-Béraud, aki marha TSH-val szemben termelt immunszérummal emberi TSH-t határozott meg. Kissé hasonló elv alapján termeltünk mi is emberi meghatározásra alkalmas immunszérumot. Tengerimalacokat marha TSH-val immunizáltunk, majd néhány hónap immunizálási szünet után állatainkat igen kis mennyiségü emberi hormonnal kezeltük. Az igy kapott immunszérum megfelelő reakciót adott az emberi TSH-val is. Az igy kapott immunszérumok különféle higitásainak ^{125}I-dal jelzett emberi TSH-val való kötődését mutatja a 2. ábra. Az ellenanyaghoz kötött TSH meghatározására a következőkben ismertetendő eljárást alkalmaztunk.



2. ábra

Anti-TSH-immunszérumok ellenanyag-tartalmának vizsgálata. Az egyes vonalak egyedi szérummintákat jelentenek.

Abszcissza: immunszérumok higitása.
Ordinata: ellenanyaghoz kötött ^{125}I TSH radioaktivitása.



3. ábra

Szérumok ellenanyag-tartalmának gyors vizsgálata

A./ elektroszinerézissel;
B./ agarelektroforézissel

A módszer alkalmas IgG-nél nagyobb elektroforetikus mobilitással rendelkező antigének, fehérjék esetében az ellenanyaghoz kötött és nem kötött radioaktivitás gyors elválasztására. A módszer két változatát mutatja be a 3. ábra. Az egyik beállitásban két tartályt alakitunk ki a tárgylemezen kiképzett agarrétegekben. Ezekbe külön-külön helyezzük el az antigént, illetve az ellenanyag-tartalomra vizsgálandó immunszérumot. A pozitiv pólushoz közelebb helyezzük el az ellenanyag-tartalmu szérumot, a negativ pólushoz közelebb a jelzett antigént. Elektromos áram hatására az antigén és az ellenanyag találkoznak, és a pozitiv pólus felé igyekvő antigénmolekulák fennakadnak az ellenanyag-molekulák szürőrétegén. A lemez különböző helyein mért radioaktivitásból következtethetünk az immunszérum ellenanyag-tartalmára. Az eljárást biztosan ellenanyag-tartalmu szérumok használata esetén jelzett antigénpreparátumok értékelésére is fel tudjuk használni.

A másik beállitásban a jelzett antigént és a vizsgálandó ellenanyag különböző higitásait csövekben reagáltatjuk, optimális körülmények között. Az inkubációs idő végén a csövek tartalmából adott mennyiségeket helyezünk agarlemez vályulataiba. Az antigén-antitest komplexek immunglobulinszerüen viselkednek, s a gamma-globulin frakcióval együtt vándorolnak. A gamma-globulin frakcióhoz kötött radioaktivitás jelzi az immunszérum ellenanyag-tartalmát. Az 1. táblázatban összefoglalt adatok a módszer használatát mutatják TSH-val szemben termelt immunszérum, anti-inzulin, illetve anti-T_3 ellenanyagokat

1. táblázat

Immunszérumok ellenanyag-tartalmának ellenőrzése agarelekroforézissel

Immunszérum jele	Tracer antigén	Ellenanyaghoz kötött radioaktivitás %
anti TSH nyulszérum 109.sz.	^{125}I TSH	24
normál "	"	6
anti insulin tengerimalac szérum B	^{125}I insulin	70
normál tengerimalac szérum	"	9
anti T_3 tengerimalac szérum 7505. sz.	^{125}I T_3	92
normál tengerimalac szérum	"	4
anti T_3 nyulszérum 126.sz.	"	95
normál "	"	2

tartalmazó immunszérumok esetében. A módszer nem csupán ilyen megközelitő ellenanyag-meghatározásra alkalmas, hanem mennyiségi mérésekre is. Ha megfelelő jelzetlen antigén jelenlétében végezzük a jelzett antigén és ellenanyag inkubálását, a jelzetlen antigén mennyiségének arányában csökkeni fog a gamma-frakcióhoz kötött radioaktivitás.

Összefoglalva megállapithatjuk, hogy a különféle antigénekre adott immunválaszok ismeretében alkalmas módszer dolgozható ki a radioimmuoassay-re alkalmas immunszérum előállitására. Agarelektroforézises gyors módszerrel jól tájékozódhatunk az immunszérumok ellenanyag-tartalmáról.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/391-395

A GORDOX JÓDIZOTÓPPAL VALÓ JELZÉSE ÉS BIOLÓGIAI TULAJDONSÁGAI

Kutas V.*, Kocsár L.*, Krasznai I.**, Kelemen Á.***, Bertók L.***
*Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest
**Semmelweis Orvostudományi Egyetem, I. sz. Belgyógyászati Klinika, Budapest
***Gyógyszerkutató Intézet, Budapest

Az uj magyar gyógyszer ^{125}I-os jelzése, a szervezetben való eloszlásának vizsgálata. Legnagyobb a pajzsmirigy és a vese sugárterhelése.

Метка "Гордокс" изотопом йода и его биологические свойства
Куташ, В., Кочар, Л., Краснаи, И., Кедемен, А., Берток, Л.
Метка нового венгерского фармакона ^{125}I.Изучение его распределения в организме. После введения самую большую нагрузку получает щитовидная железа и почки.

Labelling of Gordox with Iodine Isotope and Its Biological Features
Kutas, V., Kocsár, L., Földes, J.
Labelling of this new Hungarian medicine and following its distribution in the organism. The highest dose is given to thyroid gland and kidneys.

A GORDOX uj magyar gyógyszer. 58 aminosavból álló polipeptid, molekulasulya 6500. Tulajdonképpen enzim, tripszin-kallikrein inhibitor, illetve proteázinhibitor. Ezt a tulajdonságát használják fel, amikor akut pancreatitises betegek gyógyitására alkalmazzák, intravénásan adva. Legujabban izületi gyulladásos megbetegedésekben is alkalmazzák, mégpedig a leghatékonyabban az izületbe injiciálva.

Az izotóppal való jelzés lehetőséget ad a GORDOX farmakológiai és élettani tulajdonságainak tanulmányozására. Ezért szükségessé vált a GORDOX izotóppal jelzett származékának előállitása. Bár a jelzést más izotópokkal is el lehetett volna végezni, pl. ^{14}C-nel, ^{3}H-nal, ^{51}Cr-mal, mégis a jódizotóp mellett döntöttünk, mivel a vele való jelzés egyszerü, és igen jó hatásfokkal végezhető.

Fehérjék jelzésére legkiméletesebb módszer, amely a fehérjék biológiai tulajdonságát a legkevésbbé befolyásolja, az elektrolitikus jelzés.

A ^{125}I-GORDOX készitményünket a jelzés után 2 héten keresztül ellenőrizzük stabilitásra, vagyis vizsgáltuk, hogy a jelzett GORDOX a jelzés után milyen mértékben adja le a hozzákötött jódizotópot. Ezt részben papirkromatográfiás módszerrel, részben más eljárásokkal végezzük.

A jelzés során a biológiai fajlagos aktivitás a mérési hibahatáron belül /± 10 %/ nem változott (kiindulás: 6500 KIE/mg, jelzés után 6130 KIE/mg).

SZIKRAKAMERÁS VIZSGÁLATOK

A vizsgálat célja az volt, hogy intravénás, illetve intraarticularis beadás után különböző időpontokban vizsgáljuk a GORDOX sorsát a szervezetben.

A kisérletet francia gyártmányu MERCASTERO készülékkel végeztük. A látótér átmérője 15 mm volt. A detektor kontakt helyzetben volt a kisérleti állat vizsgálandó testrészével. A felvételhez 4 x 5 cm-es, Typ 57/3000 Polaroid papirt használtunk.

A ^{125}I-GORDOX jellemzői a következők voltak /1971 nov.17./:

Radioaktiv koncentráció: 800 µCi/ml

Fajlagos aktivitás: 25 µCi/mg

Fehérjetartalom: 32 mg/ml

Biológiai aktivitás: 5000 E/mg

A GORDOX eloszlása patkány szervezetében i.v. adás után

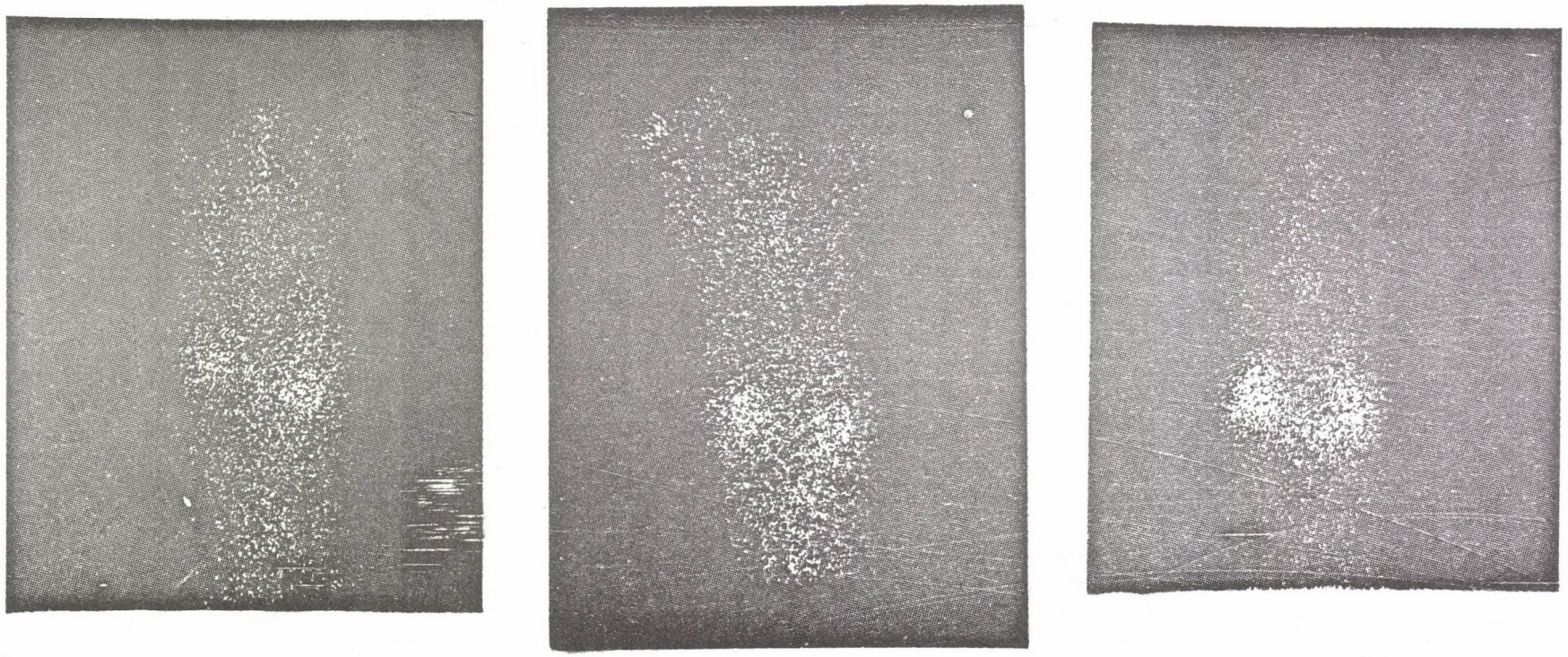
0,25 ml össztérfogatban 8 mg GORDOX-ot adtunk be i.v., mely 200 µCi radioaktiv ^{125}I-nek felel meg.

3 patkányt injiciáltunk, és felvételt készitettünk a beadás után 10, 60 és 105 perccel.

Már beadás után 10-15 perccel a vesék és enyhén a máj tájéka kirajzolódik. 60 perc mulva a vesék erősen, határozott körvonallal rajzolódnak ki, s még a legutolsó képen is jórészt változatlanul láthatjuk a radioaktivitásnak a vesékben való bedusulását.

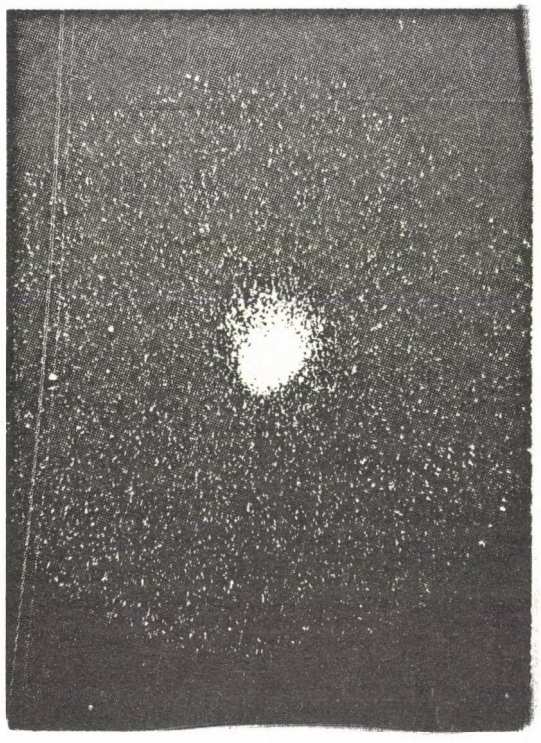
A GORDOX eloszlása nyúlban, intra-articularis beadás után

3 nyul egy-egy térdizületébe 0,1 ml össztérfogatban 80 µCi ^{125}I-ot adtunk be /ez kb. 3,2 mg GORDOX-nak felel meg/. A felvételeket a beadás után azonnal, illetve 1 és 2 óra elteltével végeztük. A kép mindhárom esetben jóformán azonos: a radioaktivitás teljes mértékben a térdizületben található. /2. ábra/.



1. ábra

Szikrakamerás felvétel patkányról 200 Ci ^{125}I-GORDOX i.v. beadása után 10, 60 és 105 perccel



2. ábra

Nyul térdizülete 80 µCi ^{125}I-Gordox intraarticularis beadása után 2 órával

A ^{125}I-GORDOX DOZIMETRIÁJA

Az egész testet, illetve a kritikus szerveket ért sugárterhelés megitélésére állatkisérleteket végeztünk. 150-200 g sulyu R/A x LE/Hl/F_1 hibrid himpatkányokat használtunk. A jelzett Gordoxot 0,2 ml össztérfogatban - mely 50 µCi-nek felelt meg - a patkányok farokvénájába adtuk be. A beadás után 1-1 kisérleti állatcsoportot 10 perc, 3, 6, 24, 72 és 144 óra mulva dekapitálással leöltük, szerveiket kipreparáltuk. Hat állaton - egésztestszámlálóval - a Gordox retenciós görbéjét határoztuk meg.

A preparálási és mérési eljárások után meghatároztuk a szervekben lévő aktivitást a beadott mennyiség %-ában.

A "standard ember" egyes szerveinek abszorbeált energiadózis-értékét a Medical International Radiation Dose Committee /MIRD/ által javasolt módszer szerint végeztük el. Számitásaink során a következő feltételeket tettük:

- az állatkisérletekben kapott halmozódási görbék megegyeznek a humán halmozódási görbékkel;
- az egyes szervekben a radioaktiv anyag homogén eloszlásu;
- az egyes szervekben abszorbeált energia a szervben halmozódott sugárzó anyagtól, a szerven átáramló vérben lévő anyagtól és az egésztest-sugárzásból származik;
- dózisintenzitási eredményeinket 144 óráig a kapott halmozódási görbék alapján, ettől kezdve pedig az utolsó mérési adat és a fizikai bomlási idő figyelembevételével számoltuk ki.

Az előzőekben ismertetett feltételek mellett kiszámitottuk az egyes szervek és az egész test abszorbeált energiadózisát 50 µCi ^{125}I-Gordox alkalmazása esetén /1. táblázat/.

Jelzett Gordox-szal végzett vizsgálataink szerint a vesének igen fontos szerepe van. A vese mutatta a legnagyobb Gordox-tároló képességet és a legkisebb szöveti clearence értékeket. A legkisebb a lép, a gonádok és tüdő

tárolóképessége. E szerint 50 µCi ^{125}I-Gordox intravénás beadása után legnagyobb sugárterhelést a pajzsmirigy és a vesék kapnak.

1. táblázat

Szerv	Teljes abszorbeált szervdózis
Vese	1,644 rad
Pajzsmirigy	2,466 rad
Máj	13 mrad
Tüdő	2 mrad
Gonád	31 mrad

A ^{125}I-Gordox még nem rutin radiofarmakon. Eredményeinkkel csupán adatokat akartunk szolgáltatni, hogy esetleges humán alkalmazás esetén jobban ismerjük a sugárterhelést.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/396-400

A HYPERTHYREOSIS ^{125}I ÉS KOMBINÁLT RADIOJÓD/^{125}I + ^{131}I/ TERÁPIÁJÁVAL SZERZETT TAPASZTALATAINK

Konrády A., Tahy Á., Bánhidi L., Policzer M.
VIII. ker. Tanács VB Balassa János Kórháza, Budapest

A ^{125}I-dal funkciócsökkentés lehet elérni, a pajzsmirigy szövetének tartós károsítása nélkül. ^{131}I-dal kombinálva a hyperthyreosis közepes és sulyos formáinak kezelésére alkalmas, korai hatás elérésére, valamint, ha az előzetes ^{131}I-terápia nem adott kielégitő eredményt.

Лечение гипертиреоза радиоактивными изотопами ^{125}I и ^{131}I
Конради, А., Таxи, А., Банхиди, Л., Полицер, М.
Использованием ^{125}I достижимо снижение функции без продолжительного повреждения ткани щитовидной железы. Вместе с ^{131}I пригодный для раннего антитиреоидного эффекта при средних и тяжелых формах гипертиреоза, а также когда первая доза ^{131}I оказалась недостаточной.

Experiences with the ^{125}I and Combined /^{125}I+^{131}I/ Radioiodine Therapy of Hyperthyreosis
Konrády, A., Tahy, Á., Bánhidi, L., POliczer, M.
By ^{125}I a lowering of function could be reached without permanently damaging the thyroid tissue. Combined with ^{131}I, the ^{125}I produces an early antithyreoid effect in the treatment of medium and acute hyperthyreosis, and is recommended when the previous ^{131}I-therapy did not give satisfactory results.

Korábbi közleményünkben[1] foglalkoztunk a ^{125}I leglényegesebb sugárfizikai és sugárbiológiai tulajdonságaival, melyek sok tekintetben különböznek a ^{131}I-től, és közöltük kezdeti tapasztalatainkat a hyperthyreosis /továbbiakban : H/ ^{125}I-terápiájáról. Indokoltnak tekintettük a ^{125}I-terápiát, ^{131}I-vel együtt adva, korai antithyreoid hatás elérése céljából. Jelen munkánkban a H. ^{125}I-kezelésének további tapasztalatait, illetve a kombinált radiojódterápiával szerzett tapasztalatainkat közöljük.

BETEGANYAG ÉS MÓDSZER

A H. diagnózisát a klinikai kép, a szokásos laboratóriumi vizsgálatok és a következő pajzsmirigyfunkciós próbák alapján állitottuk fel: ^{131}I tárolási görbe /2-6-24-48 óra/; plazmaaktivitás /2 és 48 óra/; radiojód-plazmatest, Hamolsky-test, PBI, BEI, T_4-J, alapanyagcsere, se-koleszterin. Vizsgáltuk még a thyreoglobulinnal, illetve mikroszomális frakcióval reagáló antitestek jelenlétét, illetve titerét a vérben /TRC, CF/. /A metódikát lásd 1, 2/

Beteganyagunk 60 H-s betegből áll, akik közül 21 csak ^{125}I, 39 pedig ^{125}I + ^{131}I kezelésben részesült.

A ^{125}I-vel kezelendő 21 betegnek enyhe vagy középsulyos H.-a volt. Toxicus adenoma az anyagban nem szerepel. Életkoruk 32-76 év, átlag 52,7 év, az észlelési idő 12-104 hét, átlagosan 41 hét. A betegek kórelőzményében 5 esetben szerepelt strumectomia, 11 esetben gátlószeres, 4 esetben ^{131}I-terápia. E betegek H. recidiva miatt kerültek osztályunkra és részesültek ^{125}I-terápiában, mig 5 beteg kezeletlen, friss eset volt.

AZ ALKALMAZOTT DÓZISOK

1. 8 betegnek 7000 rad elnyelt dózisra számitott ^{131}I-dózis felét /A csoport/ adtuk, ez átlag kb. 100 µCi/pajzsmirigy g, illetve 2-6 mCi.

2. 13 betegnek a számitott ^{131}I-dózissal azonos ^{125}I-ot /B csoport/ adtuk, ez 170-240 µCi/pajzsmirigy g , illetve 4-8 mCi volt.

Irodalmi adatok és elméleti megfontolások alapján célszerünek látszott bizonyos esetekben a ^{125}I és ^{131}I együttes adása, melyet az utóbbi időben mi is alkalmaztunk. Lewitus e módszer szerint kezelt 76 H.-os esetben szerzett kedvező tapasztalatairól adott számot[3].

Magunk a ^{125}I-ből a ^{131}I-re számitott dózist adtuk, ^{131}I-ből pedig annak 75-120 %-át. 7000 rad elnyelt dózisra számitottuk a ^{131}I dózisát, ez átlag 170-240 µCi/pajzsmirigy g , ^{125}I-ből 3-6 mCi, ^{131}I-ből 3-7 mCi.

Kombinált radiojód /^{125}I + ^{131}I/ terápiát a hyperthyreosis enyhe és középsulyos eseteiben alkalmaztunk. 39 beteg 43 alkalommal részesült kezelésben, 4 beteg 2 alkalommal. Életkoruk 28-77 év, átlagos koruk: 55,8 év. Észlelési idő 12-52 hét, átlag 26 hét. Előzetes antithyreoid terápiaként strumectomiát 5 betegnél, gátlószert és/vagy ^{131}I terápiát 30 betegnél alkalmaztak. 8 eset friss, kezeletlen megbetegedés volt.

A ^{125}I, illetve kombinált radiojódterápiát követően a betegeket folyamatosan ellenőriztük. A kontrollvizsgálatokra a kezelést követő 2., 3., 4., 6., 8., 12., 24. héten, majd havonta került sor. A 12. és 24. héten, majd negyedévenként részletes pajzsmirigyfunkciós vizsgálatok történtek.

A többi időpontban a PBI, Hamolsky-test és se-cholesterin vizsgálatát végeztük el. Minden alkalommal erre a célra összeállitott ellenőrző lapon rögzitettük a beteg szubjektiv panaszait, a fizikális vizsgálatok leletét, illetve változásukat.

EREDMÉNYEK

A 21 ^{125}I-dal kezelt betegből a 3 hónapos kontroll-vizsgálat alkalmával 7 beteg volt euthyreoid állapotban. E betegek közül 3 később is /6., 9.,

illetve 12 hónap mulva is/ normofunkciós volt, 3 beteg H.-a 6, illetve 9 hó mulva recidivált, 1 beteget 4 hó után nem tudtunk ellenőrizni. 5 betegen a ^{125}I thyreostaticus hatása kimutatható volt a klinikai és laboratóriumi eredmények alapján, a terápiás hatás azonban átmenetinek bizonyult, és 3 hónap mulva a H. még fennállt..

9 betegen a ^{125}I-terápia a pajzsmirigymüködést kimutathatóan nem befolyásolta.

Mint a fentiekből látható volt, a ^{125}I-terápiának alávetett betegeink nagyrésze /76,2 %/ előzetesen már más antithyreoid /gátlőszer, mütét, ^{131}I/ kezelésben részesült.

Bár a ^{125}I-terápia eredményessége és az előzetes kezelés tipusa között határozott összefüggés nem állapitható meg, mégis feltünő, hogy a 9 eredménytelenül kezelt betegből 7 korábban metothyrin-kezelésben részesült. Ezen észlelésekből azonban, a kis esetszám miatt, következtetést nem vonhattunk le.

1 beteg a laboratóriumi adatok szerint átmenetileg hypothyreotikussá vált. Substitutios terápiára nem volt szükség, az euthyreoid állapot néhány hét alatt kezelés nélkül visszaállt.

A ^{125}I-terápia eredménye az alkalmazott dózisokkal határozott összefüggést mutat: mig az A csoportból, akik a kisebb dózist kapták, 8 betegből 6-on nem mutatkozott antithyreoid hatás, a nagyobb dózissal kezelt B csoportban 13-ból csak 3 beteg nem reagált a kezelésre.

Az irodalmi adatokkal egyezően a H.-ra utaló panaszok és tünetek általában az eredményesen kezelt esetekben már a második-harmadik héten kezdtek javulni. Azokon a betegeken, akik remissioba kerültek /7 beteg/, a javulás ezen időszakot követően folyamatos, a többieken /5 beteg/ ez csak átmenetinek bizonyult, és a 4-6. héttől kezdve állapotuk ismét romlott. A ^{125}I-terápiára az ophthalmopathia és a struma értékelhetően, kimutathatóan nem változott.

A PBI értékek a terápiát követő 2-4. héten csökkentek, majd a 6. héttől ismét növekedtek. A már emlitett 7 betegen - akik 3 hónap mulva klinikailag is euthyreoidok voltak - ez időre a PBI is normalizálódott. Ugyanigy viselkedett a Hamolsky-test is.

A se-cholesterin szint a javulás mértékének elbirálásában hasznos felvilágositást ad[4]. A H. javulásával csaknem párhuzamosan, ahogy a PBI értékek csökkentek, a se-cholesterin szint a ^{125}I-terápia után a 2-4. héten emelkedő tendenciát mutat, a 4-6. héten változatlan vagy csökken, s ugyanez található a 8-12. héten is. A 3. hónapra remissióba került 7 beteg se-cholesterin szintje volt a magasabb.

39 betegünk részesült kombinált radiojódterápiában. Az eredmények értékelésekor különös figyelemmel voltunk arra a kérdésre, hogy a klinikai tünetek vagy laboratóriumi eredmények tükrében kimutatható-e a ^{125}I korai antithyreoid hatása, és ha igen, milyen mértékben.

A ^{131}I-hatás az irodalmi adatok és saját korábbi megfigyelések szerint 5-6 héttel a terápia után mutatkozik. Kontrollvizsgálataink időpontjának megválasztása biztositotta a kezelés utáni első hetek észlelését.

A 2-3-4. héten észlelt változásokat a ^{125}I hatásának tulajdonitottuk.

Korai antithyreoid hatás 14 esetben volt kimutatható. 8 eset ilyen szempontból nem volt értékelhető, mert a betegek a fenti időpontokban nem jelentek meg, vagy pedig gátlószert is kaptak.

21 betegen korai antithyreoid hatást nem észleltünk. Amint az korábbi tapasztalataink alapján várható volt, a kombinált radiojódkezelés, a ^{131}I részvétele miatt, kifejezettebb antithyreoid hatást mutatott, mint egyedül a ^{125}I. Az eredményeket az 1. táblázat mutatja.

1. táblázat

A ^{125}I és a kombinált radiojódkezelés eredményei beteganyagunkban

	^{125}I	$^{125}I + ^{131}I$
Gyógyult	3	18
Kifejezett javulás	4	6
Átmeneti javulás	5	8
Hypothyreosis	-	2
Eredménytelen	9	9
Összesen	21 eset /21 beteg/	43 eset /39 beteg/

Kifejezett javulás: hyperthyreosis egyes klinikai tünetei vagy egyes laboratóriumieredményei észlelhetők, de antithyreoid terápiát nem kellett beállitani, a beteget tovább észleltük.

Átmeneti javulás: a hyperthyreosis tünetei csökkentek ugyan, de ujabb antithyreoid kezelésre volt szükség.

A kombinált radiojóddal kezelt csoportban 2 betegen észleltünk poszttérápiás hypothyreosist, akiken napi 25 mg thyranonnal substitutiot állitottunk be. További sorsukat ellenőrizni fogjuk, melynek során ki fog derülni, hogy hypothyreosisuk tranzitorikus-e vagy végleges.

Kétségtelennek látszik, hogy a ^{125}I antithyreoid hatásának eredményei egyelőre elmaradnak az egyébként tetszetős elméleti megfontolások alapján várható eredményektől.

Saját tapasztalataink alapján is azonban megerősitjük, hogy a ^{125}I feltétlen alkalmas a H. bizonyos eseteinek, illetve a H. egyes szakaszainak kezelésére, egymagában alkalmazva is, de még inkább kombinált terápia formájában.

A ^{125}I izotópnak a ^{131}I izotóptól eltérő olyan sugárfizikai, illetve sugárbiológiai sajátosságai vannak, amelyeket a H. terápia során értékesithetünk, illetve az indikáció mérlegelésekor a döntésben felhasználhatunk. Ezek közül leglényegesebbek:

1. antithyreoid hatása viszonylag korán, már 2-3 hét után jelentkezik,

2. a sugárzás biológiai hatása elsősorban az epithelsejtek apicalis részén érvényesül, és igy gátolja, csökkenti az itt elhelyezkedő hormonszintézist végző sejtelemek funkcióját. A basalisan fekvő sejtmagot sugárzás alig éri.

E speciális, különleges sajátosságok szabják meg a ^{125}I-terápia indikációit. Ezek a következők:

1. a H. olyan enyhe esetei, ahol izotópterápia indikációja fennáll, de azzal inkább funkciócsökkenést óhajtunk elérni, a pajzsmirigy szövetének lehetőleg nagyobb, tartós kárositása nélkül.

2. A H. középsulyos és sulyos formáiban - ^{131}I-dal együtt adva - korai antithyreoid hatás elérése céljából.

3. A hyperthyreosis ^{131}I-izotópterápiája kapcsán olyan esetekben adjuk, ahol az első dózis eredménye nem kielégitő, és további antithyreoid kezelést tartunk szükségesnek.

IRODALOM

1. *Policzer M.*, et al., ^{125}I izotóppal szerzett kezdeti tapasztalataink a hyperthyreosis terápiájában. Izotóptechnika 15 /1972/ 626
2. *Policzer M.*, A pajzsmirigymüködés vizsgálata, *Somogyi Gy.*, *Policzer M.*, *Nagy J.*, "Radioaktiv izotópok diagnosztikus alkalmazása", Medicina, Budapest, 1968. 47. o.
3. *Lewitus Z.*, et al. IV. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneve, 1971. szept.6.
4. *Policzer M.*, *Marton M.*, *Bazsó E.*, Orv. Hetil. 106. /1965/ 877

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/401-405

$^{113}In^{m}$SMAA - TÜDŐSZCINTIGRÁFIÁRA ALKALMAS UJ RADIOFARMAKON

Csetényi J., Szentessyné Számel I., Füzy M., Karika Zs.
Országos Onkológiai Intézet, Budapest

A készitmény előállitására nem kivánatos mellékhatásokat okozó anyagokat nem használtak. Tüdőszcintigráfiára a legalkalmasabb indiumkészitménynek tartják.

Альбумин макроагрегат, содержащий сульфид радиоиндия. Изготовление нового радиофармакона для легочной сцинтиграфии, его биологическое поведение
Четени, Я., Самел, И., Фюзи, М., Карика, Ж.
В изготовлении препарата материалы с нежелательными побочными действиями не были использованы. Препарат считается наиболее пригодным соединением индия для сцинтиграфии легких.

$^{113}In^{m}$-SMAA - A New Pharmacon for Lung Scintigraphy
Csetényi, J., Szentessyné Számel, I., Füzy, M., Karika,Zs.
Preparate produced from constituents without undesirable by-effects is estimated to be the most appropriate indium compound to lung scintigraphy.

A tüdőszcintigráfiára alkalmas $^{113}In^{m}$-készitmények többsége fémelemeket /vasat vagy aluminiumot/ mint hordozót, illetve zselatint tartalmaz. Irodalmi adatok szerint e gyógyszerek i.v. beadása után a fém okozta káros mellékhatás vagy pirogén-reakció tapasztalható. Ezért célul tüztük ki olyan $^{113}In^{m}$-készitmény kidolgozását, mely humán tüdőszcintigráfiára használható, ártalmatlan: nem toxikus és pirogén anyagokat nem tartalmaz, amellett egyszerü technológiai müveletekkel gyorsan előállitható. A radioindium-szulfidot tartalmazó albumin makroaggregátummal /$^{113}In^{m}$SMAA/ - mint sikeres tapasztalataink mutatják - céljainkat maradék nélkül sikerült elérni.

Az előállitás módszere a következő:

1. Steril, pirogénmentes, zárt üvegedénybe 4,0 ml $^{113}In^{m}$ steril 0,05 n sósavas eluátumát engedjük. /Az előállitás során Byk-Mallinckrodt cég 25 mCi aktivitásu steril generátorát használtuk./
2. Hozzáadunk 0,22 µ-os Millipore-szürővel sterilezett 0,5 ml 0,2%-os $Na_2S_2O_3$-oldatot és 1,0 ml 3 n HCl-at

3. Az elegyet forró vizfürdőn 5 percig melegitjük.
4. Hozzáadunk 0,3 ml 2%-os steril humán szérumalbuminoldatot és 2,0 ml pH 8-as foszfát-puffert.
5. Az üveg tartalmát autoklávban 120°C-on 15 percig hőkezeljük.
6. Az edényben kivált, enyhén összetapadó aggregátum szemcséket steril fecskendővel két- háromszori felszivással szuszpendáljuk.

Az előállitás során savas közegben $Na_2S_2O_3$-mal kénkolloidra adszorbeált indium-szulfid képződik, mely albumin és foszfát-puffer, továbbá hőkezelés hatására a képződő albumin aggregátum szemcséihez kötődik ugy, hogy a radiokolloidot körülvéve koprecipitátumot képez.

A $^{113}In^{m}$SMAA készitmény lassan ülepedő aggregátum szemcséket tartalmazó, pH 6-7 hidrogénion-koncentrációju folyadék. Utólagos tisztitásra /ülepités, centrifugálás, ioncsere, stb./ nincs szükség. Izotóniás NaCl-oldattal a kivánt térfogatra higitható. Alkalmazás előtt felrázandó. 25 perc alatt előállitható. Szemcseméretе Bürker-kamrában mérve átlagosan 30-35 µ. A 100 µ-nál nagyobb részek hányada kevesebb mint 2%.

Az aggregátumhoz kötött radioindium az összaktivitás 98,5 - 99%-át tartalmazza, vagyis a radioaktiv beépülés hatásfoka csaknem kvantitativ. Stabilitási vizsgálataink azt mutatták, hogy a szemcseméret-megoszlás és a kötött radioindium-tartalom 8 órán belül szignifikáns mértékben nem változik.

A készitménnyel szervmegoszlási méréseket végeztünk 180 g-os patkányokon. A $^{113}In^{m}$SMAA egy ml-ének beadása után 10 perc mulva az összaktivitás 95-98,5%-a a tüdőkben, 0,5-1,2%-a a májban, 0,5% alatti mennyiségben a lépben, illetve a vesékben jelentkezik. Az aggregátum szemcsék tüdőkben való degradálódása már a beadást követő 1. óra után szignifikáns mértékben kimutatható, majd a 4. órában a tüdők májhoz viszonyitott radioindium-tartalma az eredeti érték 71%-ára csökken.

A $^{113}In^{m}$SMAA biológiai viselkedését betegeken profilscanning-módszerrel vizsgáltuk. Hat különböző betegen 2 mCi aktivitásu készitmény i.v. beadását követően félóránként mértük az egész test radioindium megoszlását. Tapasztalataink szerint a beadást követő első percben, továbbá a 30. percben is csak a tüdő felett mutatható ki radioaktivitás. A második órában azonban már a máj felett is jellegzetes csucs tapasztalható, mely további 30 perc után még intenzivebben jelentkezik. Profilscanninggel végzett méréseink alapján a készitmény biológiai felezési ideje a tüdőben 6-9 óra között volt.

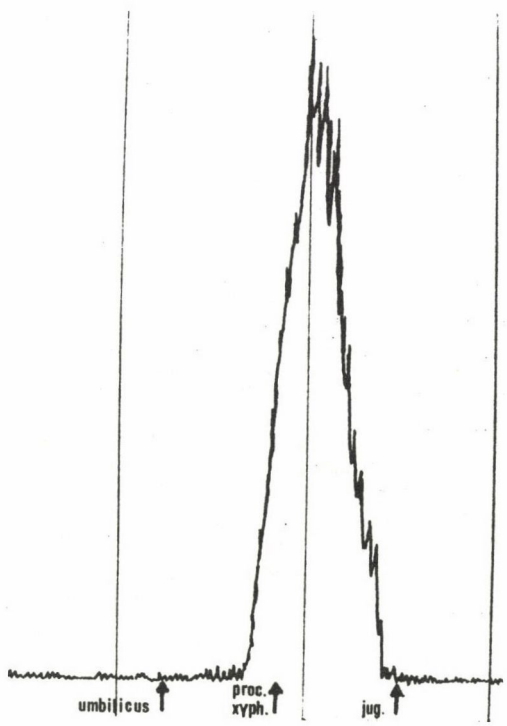
1. táblázat

$^{113}In^{m}$SMAA i.v. beadása után a tüdőben és májban mért aktivitás százalékos megoszlásának változása patkányokon

Idő /min/	Testszövetenkénti aktivitása /% ± σ/		Máj-tüdő aktivitás hányada m/t
	Tüdő /t/	máj /m/	
10	99,7 ± 0,1	0,3 ± 0,1	0,003
30	97,3 ± 0,2*	2,7 ± 0,1*	0,028
60	97,0 ± 0,2*	3,0 ± 0,5*	0,031
90	90,9 ± 0,1	9,2 ± 0,4**	0,101
120	85,1 ± 0,4	14,9 ± 0,3	0,175
180	82,5 ± 0,3	17,5 ± 0,4	0,212
240	71,0 ± 0,5	29,0 ± 0,6	0,408

A szervek összsulyára vonatkoztatott értékeket egyenként 6 különböző időpontban leölt állat ismert sulyu homogenizált szerveiből vett minták beütésszám-átlagából határoztuk meg. /Tüdő + máj összaktivitása = 100%/

Student-féle t-próba: * $P<0,01$; ** $P<0,05$

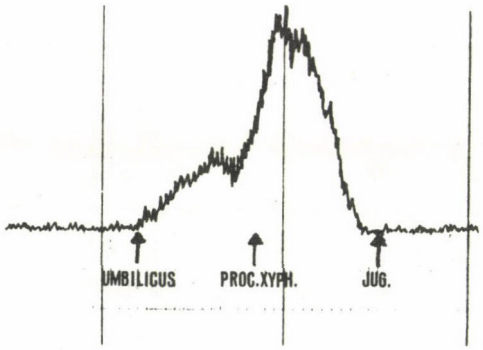


1. ábra

2 mCi $^{113}In^{m}$SMAA i.v. beadást követő 30 perc után készült profilszcintigram. Aktivitásdusulás csak a tüdőben látható

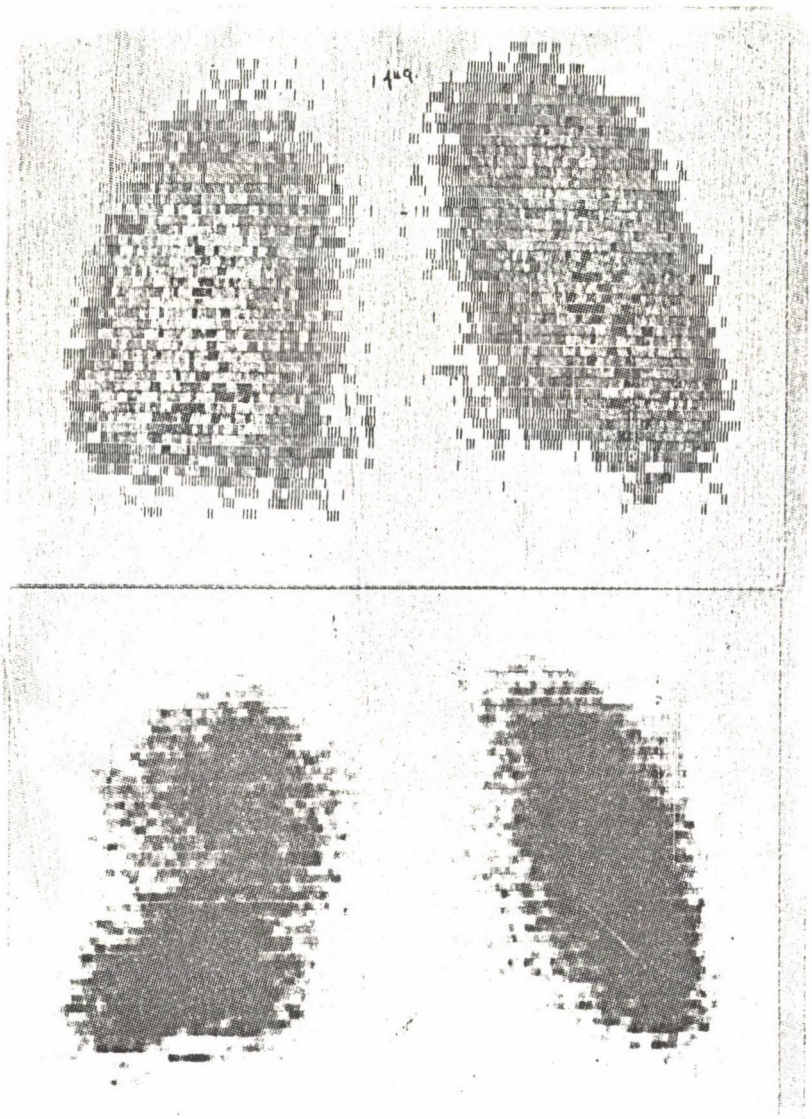
A $^{113}In^{m}$SMAA kedvező sugárfizikai állandói miatt a tüdőt, mint kritikus szervet ért sugárterhelés, 2 mCi esetén, számításaink szerint, csupán 1,0-1,2 rad körül van.

Humán tüdőszcintigráfiás vizsgálatainknál minden esetben jól értékelhető szcintigráfiás képet kaptunk. Az alkalmazott $^{113}In^{m}$SMAA aktivitása 1,5-2,0 mCi volt. Méréseinket SELO 7A/5B tipusu kétdetektoros Rectilinear Scanner-rel végeztük.



2. ábra

Profilszcintigram két és fél órával a beadás után. A tüdőkhöz viszonyitott aktivitás kb. 30%-a már a májban található



3. ábra

1,9 mCi $^{113}In^{m}$SMAA i.v. beadása után készitett normális perfuziós viszonyokat mutató tüdőszcintigram. /Szines szcintigramról készitett másolat/

4. ábra

1,7 mCi aktivitásu készitménnyel kapott foto-szcintigráfiás felvétel. A jobb tüdőnek, különösen a középlebeny vetületének megfelelő szabálytalan perfuziója figyelhető meg.

A készitmény i.v. beadása alatt, valamint azt követően mellékhatásokat, /pl. fulladást, collapsust, pulzusszám-fokozódást, hidegrázást, stb./ nem tapasztaltunk.

Összefoglalva megállapitható, hogy egyszerü technológiai müveletekkel gyorsan előállitható, humán tüdőszcintigráfiára alkalmas készitményt dolgoztunk ki. Eljárásunkban uj az a körülmény, hogy a korábbi hasonló célu $^{113}In^{m}$-készitményekkel szemben nem kivánt mellékhatásokat okozó anyagokat nem alkalmaztunk. Biológiai vizsgálataink és eddigi sikeres tapasztalataink alapján e készitményt tüdőszcintigráfiás vizsgálatokra a legalkalmasabb $^{113}In^{m}$-tartalmu radiofarmakonnak tartjuk.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/406-410

RADIOAKTIV DIAGNOSZTIKUMOK RADIOKÉMIAI TISZTASÁGÁNAK DOZIMETRIAI JELENTŐSÉGE

Predmerszky T., Farkas G.
Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

Az izotópos vizsgálat technikája, a vizsgált egyén egyéni tulajdonságai, a preparátum szennyezése, e szennyezésnek az alapvegyületétől eltérő anyagcseréje befolyásolja a kapott dózist.

Дозиметрическое значение радиохимической чистоты радиоактивных диагностикумов
Предмерски, Т., Фаркаш, Г.

На полученную от изотопных препаратов дозу оказывают влияние техника измерения, индивидуальные черты осмотренного больного, загрязнения в препарате и их метаболизм, уклоняющий от метаболизма основного соединения.

Dosimetrical Importance of Radiochemical Purity of Radioactive Diagnostical Preparates
Predmerszky, T., Farkas, G.
Dose is influenced by the test technique, the individual characteristics of patients, the contamination of preparate and the difference in the metabolism of contamination and the basic compound, resp.

Az utóbbi években a betegellátás keretében mind nagyobb méretekben veszneknek igénybe radioaktiv anyagokat diagnosztikai célból. Radioaktiv diagnosztikumnak kizárólag azokat az anyagokat tekintjük, amelyeket diagnosztikai célból juttatnak az emberi szervezetbe, amelyek a szervezet anyagcsere-folyamataiban résztvesznek, és nem tartoznak a zárt sugárforrások közé.

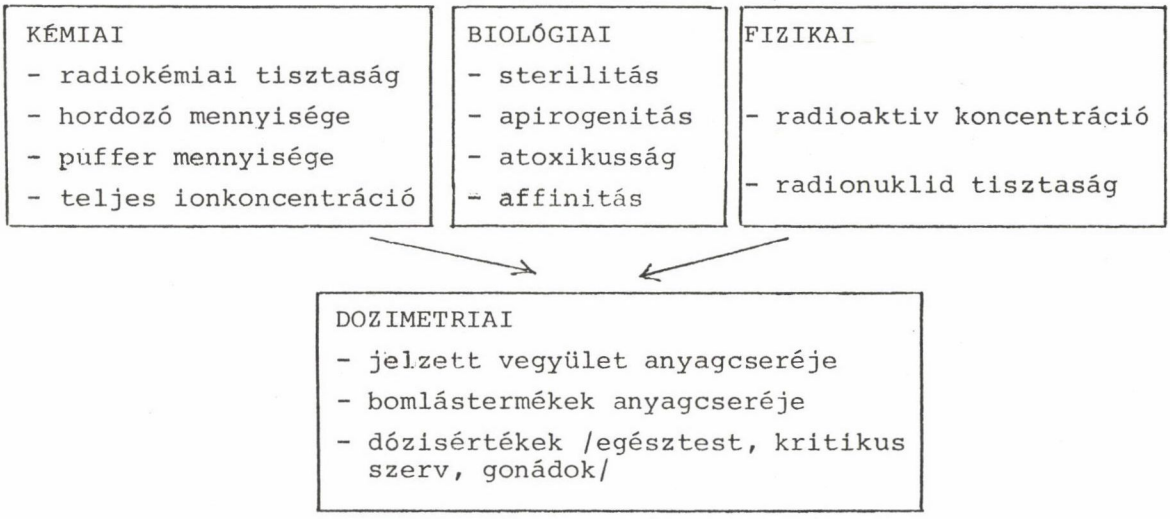
A radioaktiv diagnosztikumokkal szemben támasztott két legfontosabb követelmény a következő:

1. a készitmény minél eredményesebben legyen felhasználható a kivánt diagnosztikai célra;
2. a készitmény feleljen meg a gyógyszerekkel szemben támasztott követelményeknek.

A radioaktiv diagnosztikumok csak akkor alkalmazhatók, ha mindkét feltételt együtt kielégitik. A diagnosztikai alkalmasság kérdésével most részletesebben nem foglalkozunk, de itt is meg kell emliteni, hogy az eljárás információértékének meg kell haladni az abból eredő kockázat mértékét.

A gyógyszerekkel szemben támasztott követelmények a nem kivánatos mellékhatások kiküszöbölését célozzák. Jelen esetben az általános gyógyszerellenőrzési szempontokhoz még a radionuklid-sugárzásból eredő, el nem kerülhető dózisterhelés és bomlás, illetve szennyeződés további dózisterhelése járul. A diagnosztikumok minősitését mindhárom irányban el kell végezni.

A radioaktiv diagnosztikumok ellenőrzésének általános irányát az 1. sz. ábra mutatja.



1. ábra

Radioaktiv diagnosztikumok ellenőrzésének irányai

A radioaktiv diagnosztikumtól "ideális" feltételek között azt várják, hogy a kérdéses radionuklidot csak a kivánt kötésben tartalmazza, és szennyező termék ne legyen jelen. Ezt a követelményt, a radioaktiv nuklidok előállitása, a jelzések technológiája és a tárolás közben fellépő radiolizis és az esetleges fizikai kémiai folyamatok miatt, teljes mértékben nem lehet megvalósitani. A minőségi ellenőrzés egyik célja éppen annak megállapitása, hogy a szennyeződés egy bizonyos maximális értéket nem lépett-e tul. Ennek az értéknek a megállapitásánál egyik döntő tényező a vizsgált személy belső sugárterhelésére jellemző dózisérték.

A radioaktiv diagnosztikumokkal végzett vizsgálatok száma napjainkban egyre növekszik. Az igy kapott dózisterhelés az összlakosság szempontjából sem hagyható figyelmen kivül. A terhelés csökkentésére fokozzák a vizsgálatok hatékonyságát, fejlesztik a méréstechnikai módszereket, és a jobb minőségü, uj radioaktiv diagnosztikumok bevezetésével csökkentik a bevitt anyag aktivitását.

A radioaktiv izotóppal jelzett gyógyszerek - és ez különösen vonatkozik

az uj készitményekre - belső dózisát általában a következő módon becsülik meg.

A megfelelő tisztaságu jelzett vegyület anyagcsere-folyamatait állatkisérleteken tanulmányozzák, majd az igy kapott eredményeket adaptálják emberre, és kiszámitják az u.n. "standard" emberre vonatkozó belső dózisértéket. A belső dózist általában a kritikus szervekre, az egész testre és a gonádokra szokás megadni. Az eredményeket még esetleg kiegészitik a humán vizsgálatok alkalmával tapasztalt eltérésekkel. Nem terjedt el azonban általánosan az, hogy a szennyeződések nagyságából, esetleg eltérő dinamizmusából is levonják a dozimetriai következtetéseket.

A "standard" ember alapján végzett számitás az egyes izotópfajták összehasonlitásánál előnyös. Az igy kapott értékeket általában a kezelőorvosok ismerik. Az ideális elképzeléstől azonban távol áll a valós helyzet. Konkrét esetben egy ember belső dózisát több egyedi paraméter határozza meg, mint pl.: magassága, sulya, kora, neme, esetleges szervi elváltozásai, anyagcseréje stb. Ehhez járul még az alkalmazott diagnosztikum biológiai, illetve fizikai, kémiai jellege, aktivitása stb.

Az 1. táblázatban található - irodalmi adatok alapján - néhány vizsgálati eljárásnál számitott belső dózisérték. Sajnos ezeket az értékeket nem mindig tekinthetjük biztosan jellemzőnek, mivel nagyságuk függ a szerző által választott modelltől és számitások menetétől. Az azonban világosan látszik, hogy a kapott dózis mennyire függ az alkalmazott radioaktiv diagnosztikumtól és aktivitásától.

Az elmondottak alapján felvetődik az a gondolat, hogy célszerü lenne diagnosztikai alkalmazás esetén a kérdéses diagnosztikum ugynevezett toleranciaértékét is megadni. Ez az érték /pl. µCi/testsuly kg/ az a javasolt mennyiség, mellyel a vizsgálat átlagos technikai felszereltséget feltételezve elvégezhető. Ennek bevezetését azért tartanánk szükségesnek, mert pl. elavult mérési metodikával és a nagyobb adagok alkalmazásával a vizsgált személy az elfogadható kockázattal együttjáró belső dózisértéknek többszörösét kapja, és természetesen a szennyezésből származó járulékos terhelés is nő.

A belső dózisterhelés csökkentésének másik lehetséges módja az, amikor többféle radioizotóppal elvégezhető vizsgálatnál - a lehetségeshez képest - a legkedvezőbbet választjuk.

A 2. táblázat nemcsak a vértérfogatmérésére használt egyes diagnosztikumok egésztestdózisáról ad felvilágositást, hanem jól látszik az is, hogy a standard embertől, jelen esetben a "standardizált" gyermekmodelltől való eltérés mennyire befolyásolja a dózisérték nagyságát.

Mindezekhez járul a preparátumok szennyeződésének kérdése. Az olyan diagnosztikumfajtákat, melyeknek előállitásuk módjától eredően nagy a szennyezettségük, vagy tul nagy szervdózist eredményeznek, ki kell vonni a forgalomból,

1. táblázat

A kritikus szerv és a gonádok átlagdózisa mradban, 1 µCi alkalmazása esetén

Vizsgálat iránya	Nuklid	Kritikus szerv és dózisa		Gonáddózis	
				Férfi	Nő
Pajzsmirigy	^{131}I	pajzsmirigy	230-1900	0,87-7,3	0,16-1,3
Agyscanning	$^{99}Tc^{m}$	egésztest	0,013	0,014	0,015
Agy- és vesescanning	^{203}Hg	vese	76	0,076	0,21
	^{197}Hg	vese	19	0,011	0,026
Agyscanning, placenta-lokalizáció, stb.	^{131}I-HSA	vér	6,4	1,7	1,7
	^{125}I-HSA	vér	1,2	0,62	0,63
Májscanning	^{198}Au-koll	máj	40	0,11	0,25
Schilling-test	^{58}Co	máj	210	2,6	8,3
	^{60}Co	máj	8100	81	210
Renográfia	^{131}I-hipp.	vese	0,3	0,016	0,03
	^{125}I-hipp	vese	0,04	0,0025	0,0064
Vvs. élettartam	^{51}Cr	vér	1,4	0,22	0,22
Tüdőscanning	^{131}I-MAA	tüdő	7,7	0,074	0,11
	^{125}I-MAA	tüdő	1,9	0,011	0,018
Pankreaszscanning	^{75}Se	egésztest	8,1	8,1	8,1
Veseanyagcsere	^{59}Fe	vér	97	22	22

2. táblázat

Az egész test dózisa /mrad/µCi/ vértérfogat mérése esetén

életkor \ alkalmazott diagnosztikum	^{131}I-albumin	$^{99}Tc^{m}$-albumin	^{51}Cr-jelzett Vvs	$^{99}Tc^{m}$-jelzett Vvs
ujszülött	32	0,20	7,0	0,20
1 év	10	0,06	2,5	0,06
5 év	6	0,04	1,5	0,04
10 év	4	0,03	1,0	0,03
15 év	2,5	0,02	0,6	0,02
standard ember	2	0,02	0,5	0,02

ha más kedvezőbb gyógyszerekkel tudjuk őket helyettesiteni /pl. ^{203}Hg-neohydrin, ^{60}Co - B-12 vitamin/.

Általános elvként kimondhatjuk, hogy a radioaktiv diagnosztikumok szennyeződéséből származó dózisterhelést a lehetőségekhez mérten csökkenteni kell. A dozimetriai szempontból jelentős nuklidtisztaság, valamint radiokémiai tisztaság toleranciaértékeit ma még általában a technológiailag elérhető szinten szokták megadni. Kevés vizsgálatról tudunk - különösen a radiokémiai tisztaságra irányulóan -, mely a szennyeződés dózimetriai szempontból való alapos vizsgálata alapján határozná meg a toleranciaértékét.

A nuklidtisztaság megitélésénél figyelembe kell venni, hogy a jelző izotóp fizikai tulajdonságától mennyire térnek el a szennyező nuklidok tulajdonságai. Itt elsősorban a fizikai felezési időre és a sugárfizikai jellemzőkre gondolunk. Nyilvánvaló, hogy a jelző izotóphoz képest rövidebb fizikai felezési idővel rendelkező szennyező nuklid kedvezőbb megitélésben részesül a hosszabb felezési idejüvel szemben. Hasonlóképpen a kedvezőbb vagy azonos sugárfizikai jellemzőkkel biró nuklidszennyeződés enyhébb megitélés alá esik. Példaként emlithetjük a ^{198}Au reaktorban való előállitásakor keletkező ^{198}Au-t, mely fizikai jellemzőiben lényegesen nem tér el az előbbitől, ezért a szennyeződési határértékekkel szemben a tulzott szigoruság nem indokolt. Ellenkező példaként az izotópgenerátorokat, illetve az eluatumukban szennyezőként jelenlévő anyaelem nagymértékben eltérő tulajdonságait emlitenénk meg. Az anyaelemnek, a lányelemhez képest, hosszu a felezési ideje /3. táblázat/. Kismértékü szennyeződés esetén is hosszu idejü sugárexpozicióra számithatunk, és a szennyeződésből származó dózisterhelés nagyságrendben is összemérhető a jelző anyagból származó dózisterheléssel. Megitélésünk szerint ezért csak jól felszerelt nagyobb intézmények, illetve központok képesek az izotópgenerátorokból minőségileg megfelelő termékeket előállitani, azokat menet közben ellenőrizni, a minőségi követelmények és a gazdasági szempontok optimális betartása mellett.

3. táblázat

$^{99}Tc^{m}$ és $^{113}In^{m}$ sugárterhelése májvizsgálatnál

Izotóp	Szennyező anyag	Egésztest rem	Máj rem
1 mCi $^{99}Tc^{m}$	-	0,016	0,34
	1 µCi ^{99}Mo/0,1%/	-	0,33
1 mCi $^{113}In^{m}$	-	0,01	0,45
	1 µCi ^{113}Sn/0,1%/	0,02	1,2

Az előbb elhangzottakat tovább kell bővitenünk a radiokémiai tisztaság és ezen keresztül a fiziológiás viszonyok fokozott figyelembevételével. A különféle radiokémiai szennyező anyagok anyagcseréje általában eltér az alapvegyület anyagcseréjétől. Ebben az esetben a szennyező anyag kritikus szerve, effektiv felezési ideje, illetve halmozódási görbéje lényegesen eltérhet az alapvegyületétől.

A radiokémiai szennyeződést egyszerüség kedvéért két fő csoportra lehet osztani. Az egyik a jelző izotóp és valami más szennyező vegyület kapcsolatával jön létre, mig a másik a szennyező nuklidok és az alapvegyület vagy valami egyéb szennyező vegyület kapcsolatából keletkezik. Dozimetriai szempontból fontos leszögezni, hogy ezek a kémiai szennyeződések nemcsak a radioaktiv gyógyszer előállitása vagy tárolása során, hanem magában a szervezetben is keletkezhetnek.

A radioaktiv szennyeződések felderitése, viselkedésük nyomonkövetése a szervezeten belül meglehetősen hosszadalmas vizsgálatot igényel. Célszerü lenne ezért a KGST országok közt nemzetközi együttmüködést kialakitani a fontosabb radiodiagnosztikumok részletes kivizsgálására. Ennek nyomán lehetőség nyilna a szennyeződési szintek egységes meghatározására. Ugy gondoljuk, az egységes álláspont kialakitása biztositathatná a korszerütlen termékek gyártásának leállitását, és serkentené a korszerübb termékek használatának elterjedését.

IRODALOM

1. *Y.Cohen*, Purity Criteria and General Specifications of Radiopharmaceuticals IAEA Pl - 336/L.
2. *F.Ball, R.Wolf*, Zur Frage der Strahlenexposition bei Anwendung von Radioisotopen im Kindesalter, Monatsschr. Kinderheilk. 115 /1967/ 581
3. *Krasznai, I.*, Izotópgenerátorok a gyógyászatban, Izotóptechnika 12, /1972/ 610
4. *A.C.McEwan*, Radiation Doses to Patients from Radionuclide Investigations, Aktuelle Nuclearmedizine, Ed. W. Horst, Springer, 1971.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/412-417

DIAGNOSZTIKAI JELENTŐSÉGŰ RADIOAKTIV FÉMKOMPLEXEK ELŐÁLLÍTÁSA ÉS ANALITIKAI VIZSGÁLATA

Pál I.*, Jász Á.*, Kovách A.**, Kelemen Gy-né**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest
**Országos Gyógyszerészeti Intézet, Budapest

A radiokémiai tisztaság papirkromatográfiás, elektroforézises és ioncserés ellenőrzési módszerei. AZ utóbbit találták a legegyszerűbbnek, leggyorsabbnak. Hátránya, hogy az eredményhe nagyobb pontatlanságok kerülnek.

Получение и аналитическое исследование радиоактивных металлокомплексов диагностического значения
Пал, И., Яс, А., Ковач, А., Келемен, Дь.пэ
Методы контроля радиохимической чистоты бумажной хроматографией, электрофорезом и ионно-обменом. Последний оказался самым простым и быстрым, однако в результат входят бóльшие неточности.

Preparation and Analytical Control of Radioactive Metal Complexes of Diagnostic Value
Pál, I., Jász, Á., Kovách, A., Mrs. Kelemen, Gy.
Control of radiochemical purity by paper chromatography, electrophoresis and ion exchange. The last method proved to be the simplest and fastest, with the disadvantage of lowering the accuracy of the results.

Az 1950-es évek kezdetétől számithatjuk az EDTA /etilén-diamin-tetraacetát/ és homológjainak alkalmazását a gyógyászatban fémmérgezések esetén; majd a szervezetbe került radioaktiv fémek dekontaminációs ágenseként váltak használatossá.

Az EDTA és DTPA /dietilén-triamin-pentaacetát/ a fémionokkal nem ionizáló, vizoldékony komplexeket alkotnak oly módon, hogy a molekulán belül belső gyürü képződik, amelynek a fém is tagjává válik. Az EDTA és DTPA elektron-donor tulajdonságu atomokat /O,N/ tartalmaz, és ez alapja a komplexképzésre hajlamos /elektronakceptor/ fémionokkal alkotott igen stabilis belsőkomplexeknek. A ^{14}C-nel jelzett EDTA és DTPA farmakológiai vizsgálatakor Foreman és munkatársai[1] megállapitották, hogy e két kelátképző parenterális adás után a szervezetből gyorsan kiválasztódik a vizelettel, eloszlási terük a szervezet extracelluláris tere.

1963-tól számos radioaktiv nukliddal jelzett EDTA és DTPA komplexet állitottunk elő, hogy meghatározzuk, a fémkomplexek farmakológiai tulajdonságai mennyiben egyeznek a komplexképző EDTA és DTPA tulajdonságaival, és hogy ezáltal uj radiofarmakonokat kapjunk[2].

Az általunk előállitott radioaktiv fémkomplexek sugárfizikai és kémiai jellemzőit az 1. és 2. táblázat foglalja össze.

1. táblázat

Radioaktiv fém-komplexek jelzésére használt radionuklidok fizikai jellemzői

Nuklid	$T_{1/2}$ /h/	Bomlás tipus	E /MeV/
^{51}Cr	667,2	EC	0,32
^{58}Co	1707	EC,β^+	0,51-0,81
^{64}Cu	12,8	EC,β^-,β^+	0,51-1,34
^{72}Ga	14,1	β^-	0,60-2,50
$^{113}In^m$	1,7	IT	0,39
$^{114}In^m$	1200	IT,EC	0,19-0,72
$^{115}In^m$	1,5	IT,β^-	0,335
^{153}Sm	47	β^-	0,07-0,010
^{169}Yb	763,2	EC	0,06-0,31
^{197}Hg	65	EC	0,08-0,19

A radionuklidok kiválasztásának szempontjai a következők voltak: fizikai felezési idő, sugárzási jellemzők, előállitási paraméterek, fém-komplexek in vitro stabilitása, kation biokémiai tulajdonságai stb.

Az előállitás általános menete a következő. Atomreaktorban aktivált spektráltiszta fémet vagy fémoxidot jól oldható klorid formába vittünk, általában 0,01 n sósavas oldatot állitva elő. A magreakciók során keletkező radionuklid szennyezők /azaz elsősorban az indikátor nuklid más radioaktiv izotópjai/ eltávolitása céljából, a célanyag aktiválása után, megfelelő hütési időt iktatunk be.

Egyes esetekben a fémkomplex előállitásához ettől eltérően radionuklid generátorból /pl. ^{113}Sn-$^{113}In^m$ és ^{115}Cd-$^{115}In^m$/ állitottunk elő indikátor radionuklidot. A radioaktiv fémklorid oldatokhoz Na_2Ca-EDTA és Na_3Ca-DTPA formában /steril oldatban/ adtuk a komplexképzőt, megfelelő feleslegben, abból a célból, hogy a tömeghatás törvénye alapján az ionos fém mennyiségét a legkisebbre szoritsa vissza. A kis stabilitásu Na_2Ca-EDTA és Na_3Ca-DTPA adásával a komplexképzők kémiai toxicitását kivántuk csökkenteni. A komplex-

2. táblázat

Radioaktiv fémkomplexek kémiai jellemzői

Nuklid	Me-EDTA -lgK	Me-DTPA -lgK	Előállitási magreakció	Fajlagos aktivitás Ci/g	R.a.konc. mCi/ml	Me:L	/Me-EDTA/ mmol	Megjegyzés
^{51}Cr	23		$^{50}Cr/n\gamma/^{51}Cr$	5-50	1	1:20-40	6.10^{-1}	dusitott célanyag
^{58}Co	16,3	19,3	$^{58}Ni/n,p/^{58}Co$	CF	0,1	1:100	10^{-5}	
^{64}Cu	18,8	21,5	$^{63}Cu/n,\gamma/^{64}Cu$	1-10	5	1:10	15	
^{72}Ga	20,3		$^{71}Ga/n,\gamma/^{72}Ga$	1-10	5	1:10	14	
$^{113}In^{m}$	24,9		$^{113}Sn-^{113}In^{m}$	CF	5	1:100	10^{-5}	
$^{114}In^{m}$	24,9		$^{113}In/n,\gamma/^{114}In^{m}$	0,1-0,3	0,1	1:10	8,7	
$^{115}In^{m}$	24,9		$^{115}Cd-^{115}In^{m}$	CF	1	1:100	10^{-5}	
^{153}Sm	17,2	22,8	$^{152}Sm/n,\gamma/^{153}Sm$	10-100	5	1:10	6.10^{-1}	
^{169}Yb	19,8	22,6	$^{168}Yb/n,\gamma/^{169}Yb$	$1-10^{3}$	1	1:10-40	$5,7-5,7.10^{-3}$	
^{197}Hg	21,8		$^{196}Hg/n,\gamma/^{197}Hg$	1-5	1	1:10	1,6	

képzést általában szobahőmérsékleten végeztük, kivéve a ^{51}Cr-EDTA és ^{51}Cr-DTPA esetét, ahol is a komplexképződés sebessége a nagy stabilitási állandó /-lg K/ ellenére igen lassu, s ezért az oldatot 10 percig forraltuk is. Különös figyelmet forditottunk arra, hogy a fémklorid tökéletesen elkeveredjen a komplexképző oldattal, még az oldat semlegesitése előtt. Az általában savas pH-értéken előállitott fémkomplex oldatokat nátrium-hidrogén-karbonáttal semlegesitettük pH:5-8 értékre, és nátrium-kloriddal állitottuk be az izotóniát.

A biológiai affinitás stabilizálása érdekében a ^{153}Sm-EDTA esetében O'Mara és munkatársai[3] tapasztalatai alapján számitott mennyiségü Ca-glukonátot használtunk. A radioaktiv fémkomplexek oldatát üvegszürőn végzett szürés után autoklávban sterilizáltuk.

Tekintettel arra, hogy a komplex- és ionos formában jelenlévő jelzett radioaktiv fém egyes szervekben szelektiven halmozódik, mind a diagnózis pontossága, mind pedig a felesleges, tehát nem kivánatos sugárterhelés csökkentése érdekében a komplex készitmények ionos szennyezőinek mennyiségét az emlitett szokásos fajlagos aktivitási és radioaktiv koncentráció-értékek mellett jól biztositható 1-2 % értékre korlátozzák. A radiokémiai tisztaság ellenőrzésére elsősorban papir- vagy vékonyréteg-kromatográfiás, illetve elektroforézises, valamint ioncserés, esetleg extrakciós módszerek látszanak alkalmasnak, és terjedtek el leginkább. Közülük a papirkromatográfiás és középfeszültségü elektroforézises, valamint ujabban ioncserés módszerek alkalmazási lehetőségeit vizsgáltuk.

Egy felszálló papirkromatográfiás eljárásnak valamennyi itt tárgyalt komplex vizsgálatára történt alkalmazásáról már korábban beszámoltunk[4]. Ennél az eljárásnál az ionokat 0,01-0,1 N NaOH-val különféle, a meghatározandó ionra nézve optimális, de minden esetben 7-nél nagyobb pH-értékre beállitott etanol:viz /1:3/ kifejlesztő eleggyel és kb. 3 órás kifejlesztési idővel, a komplexekre 0,8-0,9 R_f-nek megfelelő 20-24 cm-es, az ionokra pedig 0,0-0,1 R_f értékü elmozdulást eredményező, megfelelő elválasztást kapunk.

Ugyancsak közöltük egy 2,5-3,0 pH-ju, 0,1-01 M NaCl elektrolittal és 20-10 $mV.cm^{-1}$ potenciálgradienssel végrehajtott elektroforézises módszer alkalmazhatóságát a ^{153}Sm és ^{169}Yb komplexeinek vizsgálatára, amelynek segitségével 1 órás kifejlesztés esetén az ionok 12-15 cm körüli vándorlással és legfeljebb 3 cm-t elmozduló komplexektől jól elkülöníthetők[5]. Mindkét módszerhez a Whatman 1 és Whatman 3 MM, szálirányban /huzási irányban/ kivágott kromatográfiás papirt találtuk előnyösen alkalmazhatónak.

Időközben szerzett tapasztalataink szerint bizonyos esetekben anomáliák jelentkezhetnek. Igy pl. néhány alkalommal a Sm-EDTA-nál és különösképpen az egyébként öt nagyságrenddel nagyobb stabilitási állandóju Sm-DTPA-nál a komplex részleges dekomponálódására utaló, jelentős mértékü elkenődés volt tapasztalható a kromatogramon. Másrészről az itterbium komplexeinél bár a kromatogramok látszólag szépek voltak, egyes esetekben az eredményekben a szokásosnál nagyobb szórás mutatkozott. A krómkomplexeknél hasonlóképpen jelentkeztek problémák, amennyiben a Cr^{3-}(III.) ion néha, feltehetően amiatt, hogy a nátriumhidroxid hatására részben $Cr^{-}(OH)_4^{-}$-gyé alakult, diffuzan jelentkezett, és egészen a Cr-EDTA helyéig vándorolt. Végül az ^{58}Co-DTPA vizsgálatánál néhány alkalommal pontatlanságot okozott, hogy a kifejlesztő oldat eredetileg ajánlott lugossága nem bizonyult kielégitőnek. Hasonlóképpen egyéb tényezők /a légtér nem elég hosszu ideig végzett telitése, tulméretezett mennyisége, stb./ is okozhatnak eltéréseket.

Ezek kiküszöbölése érdekében foglalkoztunk egyrészt a papirkromatográfiás módszerek továbbfejlesztésével. Vizsgáltuk egyéb kifejlesztő elegyek alkalmasságát. A szerves komponensként acetont tartalmazó kifejlesztő elegyek a reprodukálthatóság szempontjából, legalábbis az itterbiumkomplexek esetében, az etanoltartalmuaknál jobbak, a metil-etil-keton- és izopropanoltartalmuak viszont alkalmatlannak bizonyultak. Alkalikus komponensként ammóniát és ammóniumsókat, illetve nátriumacetátot tartalmazó, 7,2-8,2 pH-ju kifejlesztő elegyekkel az Yb^{3+} ionra 0, a komplexekre 0,75-0,85 R_f értékkel jó elválasztást tudtunk elérni, s a vizsgált, alábbi három oldószerelegy jól egyező eredményeket szolgáltatott:

1 0,025 M ammóniumszulfát:aceton: 10%-os ammónia/10:5:0,01/, pH=8,2
2 0,05 M ammóniumacetát:aceton /10:5/, pH=7,2;
3 0,05 M nátriumacetát:aceton /10:5/, pH=7,3.

A Cr-EDTA esetén 96%-os etanol:25%-os ammónia:desztillált viz /25:5:70/ összetételü kifejlesztő eleggyel, valamint ólomacetát lecsapószer használatával a kromi- és kromát-ionok megkötése a starton megbizhatóan teljessé, az eredmények jól reprodukálhatóvá tehetők.

Végül a Co-DTPA vizsgálatánál jelentkező hibák is kiküszöbölhetők lugosabb, 10%-os NaOH: 96%-os etanol: desztillált viz /10:25:65/ elegy alkalmazásával.

A papirkromatográfia mellett vizsgáltuk a már ismertetett elektroforézises módszerünk alkalmazhatóságát is. Megállapitottuk, hogy az Yb-ra és Sm-ra megadott módszer szerint elvégezhető a többi tárgyalt komplex radiokémiai tisztaságának vizsgálata is.

Végül megemlitjük még, hogy 200 mesh szemcseméretü, Na-formáju Dowex 50WX12 kationcserélő oszlopon vizsgáltuk az Yb- és Cu-EDTA-t. A gyanta kapacitásának 5%-át meg nem haladó terhelés esetén szintén kvantitativ szétválasztás érhető el, amikor is a komplexek az ioncserélő oszlopon átmennek, mig a fémionok az oszlopon kötődnek.

A tárgyalt módszereket összehasonlitva és értékelve az alábbiakat állapithatjuk meg.

A papirkromatográfia egyszerü berendezésekkel, de hosszadalmasan kivitelezhető módszer. Kényes pontja, főleg nagy fajlagos aktivitásu készitmények esetén, hogy a meghatározás érdekében rendkivül kis mennyiségü fémiont kell lecsapva a startnál kvantitative rögziteni, lugos közegben. Egyes komplexek azonban, erősebben lugos közegben, bár a pH növekedésével stabilitásuk, illetve képződési állandójuk növekszik, valószinüleg kompetitiv hidroxokomplex képződés miatt, bizonyos bomlást mutatnak, ami elkenődést okozva rontja a kiértékelhetőséget. Az alkalmazott közeg pH-ja a vizsgálandó oldatéval nagyjából megegyező, vagy attól csak kevéssé eltérő, igy az eredeti viszonyokat csak egyes esetekben /pl. a Co-nál/ kell erőteljesebben megváltoztatni.

Az elektroforézis-módszerrel a vizsgálat gyorsabb, jó elkülönitést és reprodukálhatóságot ad. A vizsgálandó oldatéhoz képest erősen savas /2-3 pH-ju/ elektrolit alkalmazását kivánja meg. Emiatt, tekintve, hogy a pH csökkenésével a képződési állandó értéke a stabilitási állandóhoz képest több nagyságrenddel csökken, főként igen nagy fajlagos aktivitásu komplexek esetén látszólagos szennyezés jelentkezhet, vagyis a valóságosnál kedvezőtlenebb kép mutatkozhat. A fémionok többsége esetén biztonságos kontrollmódszerként alkalmazható, mert azáltal, hogy egyik mintához kontrollként adott ionos forma még savas pH-nál is a komplex helyén jelentkezik, a mintában való jelenléte biztonsággal kizárható.

Az ioncserés módszer a legegyszerübb, leggyorsabb, s abból a szempontból is előnyös, hogy a vizsgálandó oldat pH-jába sem kiván beavatkozást.

Hátránya viszont, hogy a számszerü kiértékelés alapjául szolgáló relativ impulzusszámok különböző fázisban, koncentrációban, következésképpen különböző geometriai és abszorpciós viszonyok mellett mérhetők, s igy a korrekciós faktorokkal nagyobb pontatlanság vihető az eredménybe.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/418-422

RADIOAKTIV FÉMKOMPLEXEK FARMAKOLÓGIAI VIZSGÁLATA

Pál I.*, Földes J.**, Krasznai I.**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest
**Semmelweis Orvostudományi Egyetem, I. Belklinika, Budapest

In vivo stabil és instabil komplexek patkányszervekben való eloszlásának vizsgálata.

Фармакологическое изучение радиоактивных металлокомплексов
Пал, И., Фёльдеш, Я., Краснаи, И.,
Изучение распределения стабильных и нестабильных комплексов в организме крыс.

Pharmacological Control of Radioactive Metal Complexes
Pál, I., Földes, J., Krasznai, I.
Investigation of distribution of in vivo stabile and instabile complexes in rat organs.

Hazánkban az Egészségügyi Minisztérium rendelkezéseinek megfelelően minden uj radioaktiv gyógyszer esetében sokoldalu farmakológiai és kliniko-farmakológiai vizsgálatot végzünk. Előadásunkban a diagnosztikai jelentőségü radioaktiv fémkomplexek farmakológiai vizsgálatánál kapott eredményeink egy részét ismertetjük.

Foreman és munkatársai[1] nyomán ismertek a ^{14}C-nel jelzett Na_2Ca-EDTA és Na_3Ca-DTPA farmakológiai tulajdonságai: a parenterális adás utáni eloszlási tér, az extracelluláris tér, a gyors glomeruláris filtráció.

1963-tól kezdődően különféle radioaktiv fémkomplexek farmakológiai és kliniko-farmakológiai vizsgálatával foglalkoztunk. Meghatároztuk elsősorban szervaffinitásukat, azaz parenterális adás után a patkány szerveinek fajlagos aktivitását, amit általában indikátordózis %/g-ban fejeztünk ki a beadási idő függvényében. A vizsgálatokat 180-250 g-os Wistar patkányokon végeztük. A vizsgálandó radioaktiv oldatot 0,2-0,5 ml térfogatban adtuk az állatok farki vénájába. Az állatokat éteres narkózisban öltük le, elvéreztetéssel. Vérüket

heparinos kémcsőben fogtuk fel. Meghatároztuk a szervek tömegét, és ismert tömegü szerv vagy szervrész aktivitását energiaszelektiv számlálóban mértük, és ezt összehasonlitottuk az indikátordózis ismert mennyiségével. Az állatok leölésének időpontját a vegyületek farmakodinamikája szabta meg, amit tájékozodó vizsgálat formájában néhány állaton előzetesen meghatároztunk. Vizsgálataink alapján az általunk előállitott radioaktiv fémkomplexeket két nagy csoportba soroltuk:

I. In vivo stabil komplexek /"gyors komplexek"/, amelyek parenterális adás után a szervezetben is stabilak maradnak, és a fémkomplexek farmakológiai tulajdonságai a komplexképző /EDTA, DTPA/ farmakológiai tulajdonságaival egyeznek meg. Ide tartozik a ^{51}Cr - EDTA, - DTPA, ^{58}Co - DTPA, ^{72}Ga - EDTA, - DTPA, $^{113}In^{m}$ - $^{114}In^{m}$ - $^{115}In^{m}$ - EDTA, - DTPA, ^{153}Sm - DTPA, ^{169}Yb - EDTA, - DTPA.

E fémkomplexek i.v. adás után a keringő vérben gyorsan elkeverednek, majd a vesén keresztüli filtrációjuk a beadást követő percben megindul.

1. táblázat

^{169}Yb-EDTA eloszlása patkányokban i.v. adás után
/4-4 állat átlaga/

Szerv	Idő /min/					
	5	15	30	60	180	Megjegyzés
Vér	2,31	1,57	0,7	0,28	0052	%/ml
Izom	0,37	0,22	0,14	0,054	0,008	%/g
Vese	8,6	5,2	2,4	1,0	0,6	%/szerv
Máj	2,74	1,7	1,1	0,7	0,5	%/szerv
Lép	0,26	0,21	0,18	0,15	0,04	%/szerv
Tüdő	1,91	1,47	0,65	0,47	0,06	%/szerv
Femur	0,44	0,29	0,19	0,11	0,05	%/g

A vese az 5. percben az indikátordózis 8-10 %-át tartalmazza. A többi vizsgált szerv aktivitása extracelluláris terének nagyságával, plazmatartalmával arányos. A vérben az "in vivo stabil" komplexek a vér komponenseihez nem kötődnek - sem az alakos elemekhez pl. vörösvérsejtekhez, sem a fehérjefrakcióhoz. Patkányokon a biológiai felezési idő 35 perc. Az eloszlási tér /az extracelluláris tér - "EDTA tér"/ a patkány testsulyának 26 %-a. Az "in vivo stabil" radioaktiv fémkomplexek a szervezetből gyorsan kiürülnek: 24 óra alatt 97 - 99 % indikátordózis ürül. A vizeletben a radioaktivitás komplexhez kötött formában van jelen.

A szervezetben 24 óra után visszamaradt aktivitás eloszlását a 2. táblázatban foglaltuk össze.

2. táblázat

In vivo stabil fémkomplexek eloszlása patkányokban
i.v. adás után 24 órával
/4-4 állat átlaga/

Szerv	Nuklid						
	^{51}Cr	^{58}Co	^{72}Ga	$^{114}In^{m}$	^{153}Sm-DTPA	^{169}Yb	Megjegyz.
Vér	0,001	0,003	0,001	0,001	0,001	0,001	%/ml
Csont	0,005	0,004	0,006	0,007	0,008	0,01	%/g
Máj	0,08	0,13	0,15	0,16	0,2	0,28	%/szerv
Vese	0,07	0,06	0,08	0,14	0,24	0,25	%/szerv
Tüdő	0,003	0,003	0,002	0,002	0,01	0,04	%/szerv

A vérben 24 óra után az aktivitás alig mutatható ki. A csontban, tüdőben a visszamaradt aktivitás kisebb, mint a szervezet detoxikálását végző májban és a vesében. A szervekben a retenció nagysága a radionuklidok rendszámával és fajlagos aktivitásával mutat összefüggést. Az "in vivo stabil" radioaktiv fémkomplexek tumoraffinitását Yosida és Guerin-tumorokon és Daels-sarcomán vizsgáltuk[2]. A tumor fajlagos aktivitása extracelluláris terének a nagyságától /nekrotizálás/, "életkorától" függött. A radioaktiv fémkomplex tumoraffinitása azonos "életkoru" tumoroknál azonos nagyságu. A tumor fajlagos aktivitása az extracelluláris tér fajlagos aktivitásával párhuzamosan csökken. A fenti, subcutan elhelyezkedő transzplantált tumoroknál egy órával az intravénás beadás után a tumor/agy halmozási arány 20:1 /1 h/.

II. In vivo instabil komplexek esetében az in vitro nagy stabilitásu komplexek az élő szervezetben található különféle tipusu és koncentrációju "biológiai komplexképzők" /aminosavak, fehérjék, enzimek, szerves savak stb./ hatására kationra és komplexképzőre /EDTA, DTPA/ esnek szét. A kation a "biológiai komplexképzővel" reagál, /komplexet képez/, mig az EDTA és DTPA a vizelettel gyorsan kiürül. Az in vivo instabil komplexek közül a ^{197}Hg-EDTA, ^{64}Cu-EDTA és ^{153}Sm-EDTA farmakológiai tulajdonságait ismertetjük.

A ^{197}Hg-EDTA in vitro stabilitási állandója lgK: 21,8, az ^{169}Yb-EDTA lgK: 19,8 két nagyságrenddel kisebb stabilitási állandóval in vivo is stabil, mig a ^{197}Hg-EDTA az élő szervezetben ugy viselkedik, mint a $^{197}HgCl_2$.

Ezt a tényt csak ugy magyarázhatjuk, hogy az analitikailag /papirkromatográfiás vizsgálattál/ bizonyitott fémkomplex a szervezetben rövid idő alatt /5 min/ Hg^{2+}-ra és EDTA-ra esik szét. Ez megmutatkozik a $HgCl_2$ és Hg-EDTA vesékben felhalmozott aktivitásának azonos szintjében, valamint a 24 óra alatt kiürült aktivitás kb. 4%-os, kis értékében[3]. A ^{197}Hg-EDTA-hoz hasonló értékeket tapasztaltunk ^{197}Hg-DTPA i.v. adása után is. ^{197}Hg-fémkomplexeknél a

3. táblázat

$^{197}HgCl_2$ és ^{197}Hg-EDTA eloszlása patkányokban i.v. adás után /4-4 állat átlaga/

Szerv	5 min		5 h		24 h		Megj.
	$HgCl_2$	Hg-EDTA	$HgCl_2$	Hg-EDTA	$HgCl_2$	Hg-EDTA	
Vese	4,5	5,0	34	31	31	29	%/g
Máj	1,3	1,2	1,5	1,3	1,2	0,9	%/g
Izom	0,16	0,14	0,13	0,10	0,08	0,05	%/g
Vér	2,5	2,3	1,1	0,75	0,33	0,27	%/ml

Hg-komplexekből a merkuri-ion a szervezetben, főként a vesében található -SH /szulfhidril/ csoportokhoz igen gyorsan kötődik. Ez a kötés igen erős, és a természetes komplexek közül a merkaptidek a legstabilabbak.

^{64}Cu-EDTA és ^{64}Cu-DTPA komplexeknél hasonló jelenséget tapasztaltunk. A komplexképzőkről lehasadt $^{64}Cu^{2+}$ ion gyorsan - 2 óra alatt - felhalmozódik a májban. A máj mellett a vese mutat számottevő aktivitást. A vér ^{64}Cu-aktivitása csökken, majd később ismét nő.

4. táblázat

^{64}Cu-EDTA eloszlása patkányokon i.v. adás után /4-4 állat átlaga/

Szerv	5 min	2 h	24 h	Megjegyzés:
Máj	12,5	62,3	56	%/szerv
Vese	2,7	10,5	15,1	%/szerv
Vér	3,1	1,3	1,8	%/ml

Cu^{2+} ionokról ismeretes, hogy több aminosavval és nagy molekulasulyu fehérjével /coeruloplasmin/ komplexet képeznek. Ezek nagy mennyiségben a májban találhatók. A véraktivitásszint későbbi emelkedése a coeruloplasmin-szintézissel magyarázható.

A ^{197}Hg és ^{64}Cu komplexek a vérben a plasmafehérjékhez és a vörösvértestekhez is kötődnek.

Tumoraffinitási vizsgálatokban a tumor/agy halmozási arány ^{197}Hg-komplexeknél 5-8:1 /24 h/. A tumoraktivitás az idő növekedésével nő, ami a halmozás jellegét tekintve aktiv sejttranszportra utal. Hasonló nagyságu halmo-

zódást tapasztaltunk $^{197}HgCl_2$-nál is. ^{64}Cu-EDTA, és ^{64}Cu-DTPA komplexeknél a tumor/agy halmozási arány 8-12:1 /24 h/.

A ^{153}Sm-EDTA és ^{153}Sm-DTPA komplexek eloszlási vizsgálatánál az EDTA és DTPA komplexek azonos nukliddal jelezve eltérő farmakológiai tulajdonságokat mutattak. A ^{153}Sm-EDTA a szervezetben $^{153}Sm^{3+}$ionra és EDTA-ra esik szét.

5. táblázat

^{153}Sm-EDTA eloszlása patkányokon i.v. adás után
/4-4 állat átlaga/

Szerv	1 h	3 h	24 h	48 h	Megjegyzés
Vér	0,11	0,04	0,006	0,005	%/ml
Izom	0,03	0,025	0,023	0,017	%/g
Femur	1,4	2,85	2,5	2,47	%/g
Máj	0,26	1,33	0,52	0,46	%/g
Vese	3,3	2,05	1,4	1,2	%/szerv
Tüdő	0,5	0,4	0,2	0,15	%/szerv

A ^{153}Sm a csontban halmozódik, s a halmozódás i.v. adás után 3-5h-kor éri el a maximumát. Az ionos ^{153}Sm a plazmafehérjékhez is kötődik. A ^{153}Sm-EDTA-ban az EDTA megakadályozza a ^{153}Sm hidrolizálását és $^{153}Sm/OH/_3$ kolloidok és makroaggregátumok képződését. Ugyanazon ^{153}Sm ion EDTA komplexképzővel in vivo stabil komplexet alkot, eloszlási tere az extracelluláris tér, glomerulárisan filtrálódik. A fenti esetek kapcsán a következőket állapithatjuk meg a fémkomplexek farmakológiai tulajdonságairól:

1. az in vitro stabilitási állandó azonos értéke nem minden esetben jelez azonos biológiai tulajdonságokat;
2. az in vivo stabilitás nagy mértékben függ a "biológiai komplexképzők" szervezetbeni koncentrációjától, valamint az uj komplex stabilitási állandójától.

A farmakológiai vizsgálatoknál a fémkomplexeket in vivo stabil és instabil csoportokra osztva vizsgáltuk. Meghatároztuk szerv- és tumoraffinitásuk nagyságát, kötődésüket a vér alkotó elemeihez. A vizsgált komplexek közül az ^{51}Cr, ^{58}Co, ^{64}Cu, $^{114}In^m$, $^{115}In^m$, ^{153}Sm, ^{169}Yb, ^{197}Hg diagnosztikai alkalmazásra is találtak. A ^{72}Ga komplexeket, fizikai tulajdonságuk miatt, nem alkalmazzák a humán diagnosztikában.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/423-434

GLOMERULÁRIS FILTRÁCIÓ MÉRÉSE KISÉRLETI ÁLLATOKBAN EGYINJEKCIÓS MÓDSZERREL

Molnár Gy.*, Stützel M.*, Szilvási I.*, Lengyel E.-né**, Pál I.***
*Semmelweis Orvostudományi Egyetem III. Belklinika, Budapest
**Országos Traumatológiai Intézet, Budapest
***MTA Izotóp Intézete, Budapest

Az egyinjekciós, vizelet nélküli eljárás ^{169}Yb-EDTA-t használva kis állatokban is alkalmas a GFR meghatározására. Az emberi eredményekkel történő összehasonlitás irreális.

Измерение гломерулярной фильтрации методом разовой инъекции в опытных животных
Мольнар, Дь., Штюцель, М., Сильваши, И., Лендьел, Э.нэ, Пал, И.
Метод разовой инъекции без использования мочи пригоден и у подопытных животных для определения клубочковой фильтрации. Сопоставление результатов с данными, полученными на человеке является нереальным.

Measurement of Glomerular Filtration with One-Injection Method in Experimental Animals
The one-injection method of determination of GFR by means of ^{169}Yb-EDTA without urine is applicable even to small test animals. Comparison of results with those, obtained in man is unreal.

A vizsgálat célja az volt, hogy módszert dolgozzunk ki vizelet nélküli glomeruláris filtráció /GFR/ meghatározására kisérleti állatokban, elsősorban patkányban. Ennek azért van jelentősége, mert kutyában és nyulban a klasszikus - vizeletgyüjtéssel és tartós infuzióval végzett - eljárás jól keresztülvihető.

Kisérleteinkben a következő kérdésekre kivántunk választ kapni:

1. a/ Kutyában i.v. beadás után mennyi idő mulva válik a ^{169}Yb-EDTA eliminációja egyenletessé?

   b/ Nephrectomisált kutyában mennyi idő mulva áll be az i.v. beadott ^{169}Yb-EDTA plazmaszintjének állandósága?

   c/ Nephrectomisált kutyában mekkora a ^{169}Yb-EDTA megoszlási tere?

   d/ Az eliminációs görbe első fázisa hogyan alakul normál és nephrectomisált kutyában?

2. Rágcsálóban felszivódik-e a gyomor-béltraktusból a ^{169}Yb-EDTA?

3. a/ Patkányban intraperitonealis beadás után elég gyors-e a ^{169}Yb-EDTA felszivódása ahhoz, hogy 1 óra mulva a vérben ugyanazt a szintet kapjuk meg, mint i.v. beadás után?

b/ Az általunk kidolgozott módszerrel kapott értékek mennyire egyeznek az irodalmi értékekkel?

KISÉRLETI ÁLLATOK ÉS MÓDSZEREK

ad 1. 3 normál és 5 nephrectomisált kutyát chloraloseval altattunk, majd 20 µCi ^{169}Yb-EDTA-t adtunk be. Vért az 1., 5., 10., 20., 30., 60., 90. és 120. percben vettük. Az aktivitást 2 ml plazmából mértük.

ad 2. 16 tengerimalacon végeztük a vizsgálatokat. 2 µCi ^{169}Yb-EDTA-t adtunk be szondán keresztül, 2 ml volumenben. A 24 órás székletmintákat állatonként és naponként mértük 14 napon keresztül, az aktivitási értékeket a beadott mennyiség %-ában határoztuk meg.

ad 3. a/ 5 db 250-260 g-os patkánynak intraperitonealisan és 5 db azonos sulyu patkánynak a farokvénába adtunk be 3 µCi ^{169}Yb-EDTA-t. Egy óra mulva vettünk vért a vena jugularisból. 0,1 ml vér aktivitását mértük meg a GFR meghatározásnál alkalmazott módon /1.alább/.

ad 3. b/ 35 db, az Élelmiszeripari Kutató Intézet beltenyészetéből származó, egyidős, mindkét nembeli patkányt használtunk fel. Az értékelésből két állatot technikai okok miatt ki kellett hagynunk. Az állatok megoszlása: him 21, átlag testsuly 406 g, nőstény 12, átlag testsuly 406 g.

Az állatok testsulyuktól függetlenül 2,75 µCi ^{169}Yb-EDTA-t kaptak 0,4 ml volumenben, intraperitonealisan, előzetes altatás nélkül. A vérmintákat az izotóp beadása után 1, illetve 2 órával vettük, mindkét esetben a v.jugularis-ból. Ehhez felületes éterbódítást alkalmaztunk, a vena jugularist kipreparáltuk. A vérvételekhez 20-as tüt és heparinozott tuberkulin fecskendőt használtunk, a vett vérmennyiség 0,2-0,3 ml volt. A vért óraüvegre cseppentettük, ebből szivtuk fel mikropipettával a vizsgálathoz szükséges 0,1 ml-t. Ugyanezen kicseppentett vérből történt a haematokrit meghatározása is. A 0,1 ml vért 5 ml fiziológiás konyhasóoldatot tartalmazó kémcsőbe vittük át, háromszori bemosással. A plazma, illetve vérminták és a széklet aktivitását üreges kristályban mértük, NK 150-es /GAMMA/ energiaszelektiv számlálót használtunk. Az 1 ml plazmára vonatkozó értékeket az

$$M \cdot \frac{100}{100 - Ht} \cdot 10$$

összefüggés alapján számitottuk ki, ahol

M - a ténylegesen mért beütésszám cpm-ben,

Ht - a hematokritérték

A glomeruláris filtráció számitását az általunk kidolgozott képlettel végeztük:

$$GFR = \frac{2,3}{t} \cdot \frac{I}{\frac{2,3}{t} /\log A - \log B/ t_a} /\log A - \log B/$$

ahol

t - a két vérvétel között eltelt idő percben,

t_a - az izotóp beadása és az első vérvétel között eltelt idő percben,

A - az első vérminta 1 ml plazmájára számitott beütésszám cpm-ben,

B - a második vérminta 1 ml plazmájára számitott beütésszám cpm-ben,

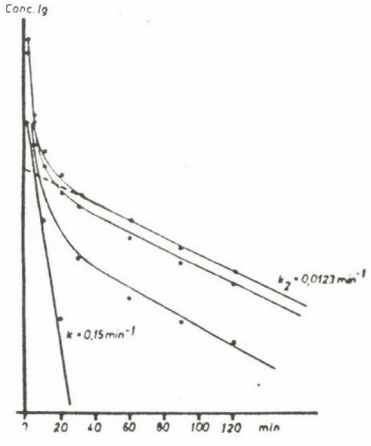
A_o - a t_o időre extrapolált beütésszám cpm-ben,

I - a beadott összaktivitás cpm-ben.

EREDMÉNYEK

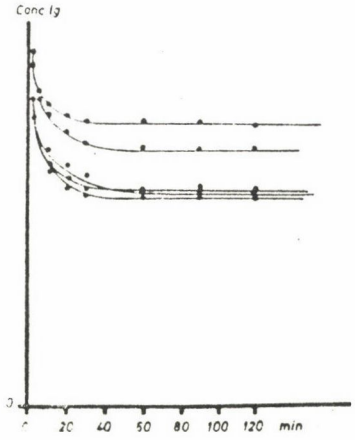
Kutyakisérletek

a/ Az 1. ábrán féllogaritmusos rendszerben tüntettük fel a három normál állat kiürülési görbéjét, melyet a plazmaaktivitás mérése alapján kaptunk. Látható, hogy a 30. perc után az elimináció már egyenletes, a görbék egymással párhuzamosan haladnak.



1. ábra

^{169}Yb-EDTA kiürülési görbék normál kutyában, i.v. beadás után



2. ábra

^{169}Yb-EDTA kiürülési görbék nephrectomisalt kutyában, i.v. beadás után

b/ A 2. ábrán ugyancsak féllogaritmikus rendszerben az öt nephrectomisált állat plazmaaktivitásának változását mutatjuk be. 40-60 perc után a görbék vizszintesen futnak.

c/ A megoszlási tér értékeit az öt nephrectomisált állatban az 1. táblázat szemlélteti.
A ^{169}Yb-EDTA megoszlási tere átlagban az állatok testsulyának 21,3%-a.

1. táblázat

^{169}Yb-EDTA megoszlási tere nephrectomisált kutyában

No	Testsuly kg	V ml	V a testsuly %-ban
151	9,5	1620	17,0
152	9,5	1900	20,0
153	10,0	2700	27,0
154	15,0	3050	20,5
155	11,0	2540	23,0
		átlag	21,3 %

2. táblázat

Az eliminációs görbe első fázisának sebessége

No	k min^{-1}	$T_{1/2}$ min	
95	0,140	4,9	
109	0,150	4,6	norm.
156	0,110	6,3	
átlag	0,13	5,2	
151	0,110	6,3	
152	0,063	11,0	
153	0,087	7,9	nephrect.
154	0,140	4,9	
155	0,078	8,8	
átlag	0,095	7,7	

d/ Az eliminációs görbe első fázisának alakulását normál és nephrectomisált állatban a 2. táblázat mutatja.

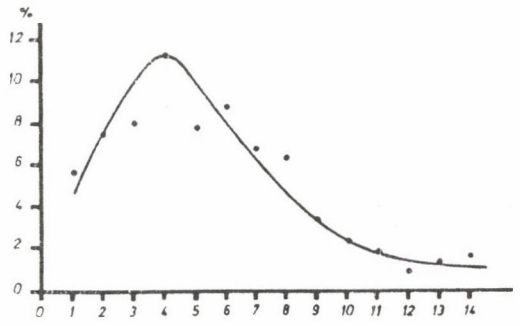
Normál állatban a k érték 0,13 min^{-1}, ez megfelel 5,2 min $T_{1/2}$ értéknek. Nephrectomisált kutyában ezek az értékek: 0,095 min^{-1}, illetve 7,7 min.

Tengerimalacon végzett kisérletek

A 16 kisérleti állatnál átlagosan 83,95%-ban kaptuk vissza két hét alatt a beadott izotópmennyiséget. A naponkénti ürités az egyes állatoknál nagymértékben különbözött.

Az összes állatból nyert naponkénti aktivitásürités átlagát a 3. ábra szemlélteti.

Látható, hogy az ürités maximuma a 4.-6. napok között mutatkozik. Az állatok vizeletében aktivitást kimutatni nem tudtunk.



3. ábra

^{169}Yb-EDTA ürülése a székletben, szondán keresztül a gyomorba adott mennyiség %-ában. 16 tengerimalac átlagértékei

Patkányokon végzett kisérletek

a/ Az 1 órás vérkoncentráció értékeit intraperitonealis, illetve i.v. beadás után a 3. táblázatban foglaltuk össze. Megállapitottuk, hogy a két beadási mód között az elérhető véraktivitás tekintetében nincs különbség.

b/ A 4. ábrán a ténylegesen kapott /számitott/ glomeruláris filtráció értékeit a testsuly függvényében ábrázoltuk. Az ordinátán a GFR értékeket tüntettük fel ml/min-ban, az abszcisszán az állatok testsulyát adtuk meg g-ban. Minden pont egy állatot jelöl.

Világosan kitünik, hogy az állatok testsulya és a GFR értéke között egyenes arány áll fenn.

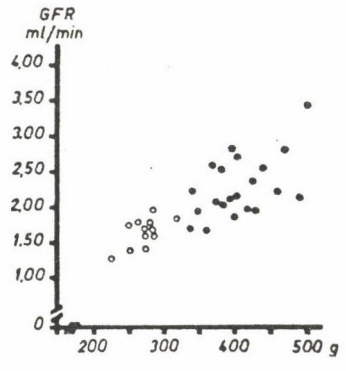
Az 5. ábra oszlopdiagrammal ábrázolja a him és nőstény patkányok testsulyának átlagát.

A 4. táblázatban him patkányok adatait állitottuk össze.

3. táblázat

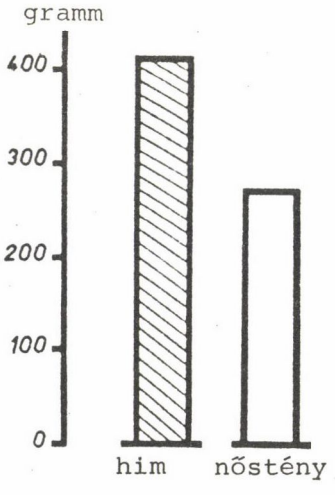
^{169}Yb-EDTA vérkoncentrációja intraperitonealis, illetve i.v. beadás után 1 órával, azonos sulyu patkányokban

No	Intraperit. cpm/o,1 ml vér	I.v. cpm/o,1 ml vér
1	1080	
2	1224	
3	1030	
4	1172	
5	1316	
6		1148
7		1380
8		1072
9		1260
10		1410
	átlag 1164	1254



4. ábra

GFR értékek patkányban a test-suly függvényében



5. ábra

A him és nőstény patkányok test-sulyának átlaga

4. táblázat

Him patkányok adatai

No	G	F	GFR ml/min	GFR ml/min.1,73m^2	GFR ml/min.100g	V	K
1	492	0,071	3,49	84,88	0,70	30,6	0,0230
3	403	0,062	2,14	59,57	0,53	28,8	0,0185
5	382	0,059	2,55	73,68	0,66	27,9	0,0240
6	475	0,069	2,82	70,26	0,60	36,0	0,0164
7	396	0,061	2,12	59,67	0,53	39,3	0,0136
9	410	0,063	2,76	75,99	0,67	34,0	0,0198
11	415	0,063	1,95	53,30	0,47	26,9	0,0174
13	386	0,060	2,04	58,50	0,52	26,4	0,0200
15	491	0,071	2,15	52,45	0,44	27,7	0,0158
16	468	0,068	2,28	57,28	0,48	26,7	0,0182
18	370	0,058	2,03	59,91	0,55	28,1	0,0195
20	366	0,058	1,50	44,70	0,41	23,2	0,0176
23	422	0,063	2,35	63,78	0,55	28,1	0,0197
24	425	0,064	1,96	52,82	0,46	23,5	0,0196
26	390	0,061	2,84	80,68	0,72	30,7	0,0237
27	406	0,062	1,85	51,50	0,45	22,2	0,0204
28	344	0,056	1,63	50,56	0,47	21,2	0,0225
29	445	0,066	2,54	66,33	0,57	28,3	0,0201
30	346	0,056	1,95	59,99	0,56	25,1	0,0225
31	368	0,058	2,58	76,44	0,63	31,9	0,0199
32	340	0,055	2,23	69,60	0,59	29,9	0,0197
átlag	406,66	0,062	2,27	60,21	0,55	28,5	0,0196

Röviditések:

No - az állat sorszáma
G - testsuly g-ban
F - testfelszin m^2-ben
V - az izotóp megoszlási tere a testsuly %-ában
GFR- glomeruláris filtráció

Az 5. táblázat a nőstény patkányok adatait mutatja. Röviditések ugyanazok mint a 4. táblázatban.

A 6. táblázat a 4. és 5. táblázat átlagértékeit és a t test alapján végzett statisztikai számitás eredményeit tartalmazza.

Ezekből az alábbi összefüggések állapithatók meg.

5. táblázat

Nőstény patkányok adatai

No	G	F	GFR ml/min	GFR ml/min.1,73m^2	GFR ml/min.100g	V	K
2	310	0,052	1,82	60,40	0,58	33,4	0,0176
4	269	0,047	1,53	55,900	0,56	28,5	0,0200
8	228	0,042	1,28	52,02	0,56	32,0	0,0176
10	252	0,045	1,75	66,50	0,71	28,2	0,0245
12	258	0,046	1,41	52,90	0,55	25,9	0,0211
14	276	0,048	2,02	72,24	0,73	34,7	0,0210
17	270	0,047	1,68	60,94	0,62	31,1	0,0200
19	255	0,045	1,76	66,54	0,69	37,6	0,0184
21	274	0,048	1,78	64,12	0,65	28,4	0,0230
22	282	0,049	1,66	58,67	0,59	26,5	0,0220
25	275	0,048	1,57	56,41	0,57	28,0	0,0204
33	245	0,044	1,44	56,12	0,56	33,4	0,0168
átlag	266,16	0,046	1,64	60,23	0,61	30,6	0,0202

6. táblázat

Him és nőstény patkányok értékeinek átlaga, szórása és az eltérések szignifikanciája

	G	F	GFR ml/min	GFR ml/min.1,73m^2	GFR ml/min.100g	V	K
him	406	0,062	2,27	60,21	0,55	28,5	0,0196
S.E.	10		0,10	4,73	0,019	0,79	
nőstény	266	0,046	1,64	60,23	0,61	30,6	0,020
S.E.	6		0,19	6,99	0,018	1,02	
p	$<$0,01		$<$ 0,01	$>$ 0,90	$<$ 0,05	$>$0,10	

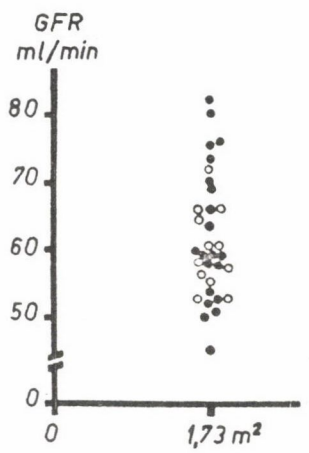
Him és nőstény patkányok testsulya, testfelszine és az abszolut értékben számitott GFR szignifikánsan különbözik.

Az 1,73 m^2-re számitott GFR érték him és nőstény patkányokban megegyezik.

A 100 g testsulyra számitott GFR érték /him állatoknál 0,55 $\pm$ 0,019 S.E., nőstény állatoknál 0,61 $\pm$ 0,018 S.E./ a nőstény állatokban szignifikánsan nagyobb, $p < 5\%$.

A 6. ábrán a normál testfelszinre számitott GFR értékeket tüntettük fel az összes, vizsgált állatnál. A pontok a him állatokat, a körök a nőstényeket jelölik. Látható, hogy a szórás meglehetősen nagymérvü.

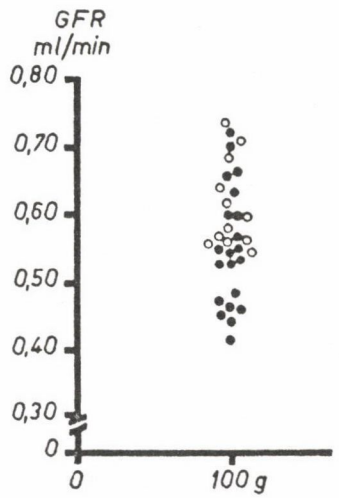
A 7. ábrán a 100 g testsulyra számitott GFR értékeket ábrázoltuk. Bár a szórás itt is elég nagy, feltünő, hogy a nőstény állatok mindegyike az ábra felső felében található.



6. ábra

Patkányok GFR értékei $1{,}73 m^2$-re számitva

● : him
O : nőstény



7. ábra

Patkányok GFR értékei 100 g testsulyra számitva

● : him
O : nőstény

MEGBESZÉLÉS

Kutyakisérleteink azt mutatják, hogy a ^{169}Yb-EDTA egyenletes eloszlása csak a beadás után 40-60 perc mulva várható. Ha a GFR meghatározásához csak két vérvételt akarunk használni, akkor kutyában is az 1. és 2. órában kell a vért levenni.

Nephrectomisált kutyákban a mért megoszlási tér - 21,3% - megfelel az extracelluláris térnek.

A GFR számitására alkalmazott módszerek abban térnek el egymástól, hogy hány kompartmentet vesznek számitásba. Az egy kompartmentet alkalmazók az eliminációs görbe alatti terület egy részét - a 8. ábrán a bevonalkázott területet - figyelmen kivül hagyják. Ezzel a t_o időre extrapolált A_o koncentráció értékét a valóságosnál kisebbnek, az $\frac{I}{A_o}$ megoszlási teret pedig a re-

álisnál nagyobbnak kapják, és ezáltal a számitott GFR érték is nagyobb lesz.

A Sapirstein által kidolgozott formula

$$GFR = \frac{I \cdot Y_1 \; Y_2}{AY_2 + BY_1}$$

ahol

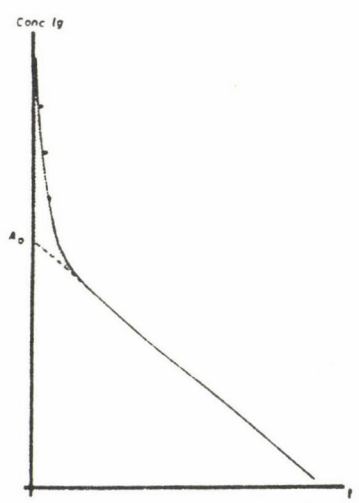
I - a beadott anyagmennyiség

A - a gyorsabb eliminációs komponenshez tartozó t_o időre extrapolált koncentráció-érték,

B - a lassubb komponenshez tartozó azonos érték,

két sebességi komponenst vesz figyelembe. Igy a görbe alatti területet pontosabban irja le.

Kisérleteinkben bizonyitottuk, hogy a gyors komponensnek csak mintegy 1/3-a származik a vesemüködéstől, nagyobbrészt egyéb tényezők /a vérben való elkeveredés, majd az extracelluláris térbe történő kilépés/ határozzák meg. Jogosan vetődik fel a kérdés, hogy a GFR számitásánál helyes-e teljes értékében figyelembe venni? Arra sem lehet egyszerüen választ adni, hogy milyen mértékben kell beszámitani, mert a gyors és lassu komponens aránya a vesemüködéstől függően változik. /Minél rosszabb a vesemüködés, annál kisebb az arány./ Meg kell emliteni még egy technikai problémát is. A görbe első szakaszának leirásához - megszerkesztéséhez - gyakori vérvételekre van szükség, ami kisállatnál nehezen oldható meg. Ezen megfontolások alapján magunk az egy kompartmentes számolási módot megfelelőbbnek tartjuk, tudva, hogy normál körülmények között kb. 10%-kal "felül mérünk".



8. ábra

Kiürülési görbe egykompartmentes modell esetében

Mivel, mint emlitettük, az első komponens kialakulását nem a vesemüködés határozza meg döntően, ezért a vesefunkció szempontjából kisebb hibát követünk el, ha a számitásból kihagyjuk.

A tengerimalacoknál kapott eredmények azt mutatják, hogy a ^{169}Yb-EDTA a gyomor-béltraktusból nem szivódik fel, tehát per os beadás esetén a vesemüködésre vonatkozóan adatot nem kaphatunk.

Patkánykisérleteink amellett szólnak, hogy a ^{169}Yb-EDTA peritoneálisan kitünően felszivódik. Ez igen nagy előny, mert a körülményesebb és technikailag sokkal nehezebb i.v. beadás mellőzhető.

További eredményeinkből egyértelmüen levonható az a megállapitás, hogy patkányok GFR értékeit csak meghatározott közös alapra vonatkoztatva lehet értékelni.

Mi legyen ez a közös alap? Az irodalomban általánosan elterjedt a 100 g testsulyra való átszámitás, de találunk adatokat 1,73 m^2-re is. Ez utóbbi feltehetően az emberi értékekkel való összehasonlitás lehetőségét célozza.

A 100 g testsulyra vonatkozó irodalmi értékek - a vizsgálati módszertől függően - jelentős eltéréseket mutatnak. 0,27 ml/min-tól 1,49 ml/min-ig találunk adatokat a normális GFR-re.

Több szerző eredményét összevetve a GFR átlagértékét patkányban 0,60 ml/min.100 g körülinek fogadhatjuk el. Megjegyezzük, hogy az emlitett értékek inulinnal, illetve kreatininnel kapott eredmények. Patkány glomeruláris filtrációjának vizelet nélküli méréséről nem találtunk adatot.

Saját eredményeink teljes mértékben megegyeznek az emlitett átlagnak elfogadható értékkel.

Az emberi eredményekkel történő összehasonlitás igen irreálisnek látszik, mert a MEEH formula alapján számitott patkány-testfelszin és a DuBois és DuBois- képlettel megadott emberi testfelszin viszonya nagymértékben eltér egymástól.

Ha a GFR testfelszinre számitott átlagértékeit nézzük, a patkány glomeruláris filtrációja normális körülmények között fele az emberi értéknek.

Vizsgálati módszerünkkel a számitásnál feltünt az, hogy az izotópkomplex eliminációs sebessége - a k érték - minden esetben nagyobb volt, mint az emberi értékek. /Embernél normális körülmények között 0,01 min^{-1}-nek, patkányban 0,0192 min^{-1}-nek találtuk/.

Emberben az EDTA megoszlási tere - függetlenül a jelző izotóptól - átlagértékben a testsuly 24%-a. Patkányban ez 28,2%-nak adódott. Magától értetődő a kérdés: ha a számolásban /a GFR számitásában/ szereplő tényezők értéke patkányban nagyobb mint emberben, hogyan lehet, hogy az azonos testfelületre számitott végérték csak fele az emberének?

A magyarázatot az adja, hogy a patkány relativ testfelülete ötször akkora, mint az emberé. 12,5 kg hipotetikus patkánytestsuly felel meg ugyanis 1,73 m^2-nek. Ebből világosan következik, hogy a relativ testfelületek és ezzel arányban a GFR értékek sem hasonlithatók össze.

Ugyanilyen helytelen következtetésre jutnánk, ha az ember GFR értékét 100 g testsulyra vonatkoztatva adnánk meg. Kiderül, ugyanis, hogy egy 65-kgos, 120 ml GFR értékü embernek 100 g testsulyra átszámitott filtrációja 0,18 ml/min lenne, mig patkányban - mint a fenti eredmények mutatják - ez 0,60 ml/min körüli érték.

Ezen összehasonlitások alapján, tehát ha a normál testfelszint vesszük alapul, a patkány GFR-je fele az emberének, a másik számitási módszer szerint pedig a háromszorosa.

Összefoglalva megállapitjuk, hogy az egyinjekciós, vizelet nélküli eljárás ^{169}Yb-EDTA-t használva alkalmas kisállatokban is a glomeruláris filtráció meghatározására.

Ez a módszer sokkal egyszerübb, mint az egyéb eljárások, az eredmények megfelelnek az irodalmi értékeknek.

Az emberi eredményekkel történő összehasonlitás irreális.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/435-439

AGYTUMOR-SZCINTIGRÁFIA ^{169}Yb-KOMPLEXEKKEL

Zoltán L.*, Pál I.**, Simkovics M.*
*Országos Idegsebészeti Tudományos Intézet, Budapest
**MTA Izotóp Intézete, Budapest

A ^{169}Yb-komplexek glomeruláris filtrációja gyors. A közel 2 órás biológiai felezési idő 10-55 mCi aktivitás használatát teszi lehetővé A komplexek tökéletesen helyettesitik a ^{203}Hg-neohydrint.

Сцинтиграфия опухоли мозга комплексами ^{169}Yb
Зольтан, Л., Пал, И., Шимкович, М.
Клубочковая фильтрация комплексов ^{169}Yb является быстрой. Приблизительно 2 часовой период биологического полураспада позволяет применять активности в 10-55 мкюри. Комплексные соединения могут заменить ^{203}Hg-неогидрин.

Brain Tumor Scintigraphy with ^{169}Yb Complexes
Zoltán, L., Pál, I., Simkovics, M.
The ^{169}Yb complexes have a high speed glomerular flitration. Owing to the approximately 2 hours biological half life 10-55 mCi activities can be used. Complexes completely substitute ^{203}Hg-Neohydrin.

Az intracranialis térszükitő folyamatok szcintigráfiás diagnosztikájában a korábban alkalmazott, hosszabb fizikai félidejü radiofarmakonok után, rövid félidejü radioizotópok kerültek felhasználásra, a sugárterhelés csökkentése érdekében. Harper és munkatársai[1] 1964-ben kezdték alkalmazni agytumor-szcintigráfiás célokra a 6 órás fizikai félidejü $^{99}Tc^{m}$ pertechnetátot. A rövid - 4,5 órás - fizikai félidejü $^{115}In^{m}$-EDTA tumoraffinitásáról 1966-ban számoltak be Pál és munkatársai[2].

Az 1,7 órás félidejü ^{113}In-DTPA-t agytumor-diagnosztikai célokra Stern és munkatársai[3] ajánlották 1967-ben. A nuklidgenerátorból kapható radionuklidok előnye, hogy a rövid fizikai félidő lehetővé teszi 10-15 mCi-s aktivitások használatát, igy a kapott információ növekszik, mig a beteg sugárterhelése még mindig lényegesen kisebb, mint a korábban szokásos radionuklidok használata esetén. A radioaktiv indiumkomplexek jelentős tumoraffinitása mellett a rövid fizikai felezési időhöz kb. 2 órás biológiai félidő társul.

Hosain és munkatársai[4] 1968-ban vezették be a ^{169}Yb-DTPA alkalmazását agytumorok szcintigráfiás diagnosztikájában. Saját vizsgálatainkat 1970-ben

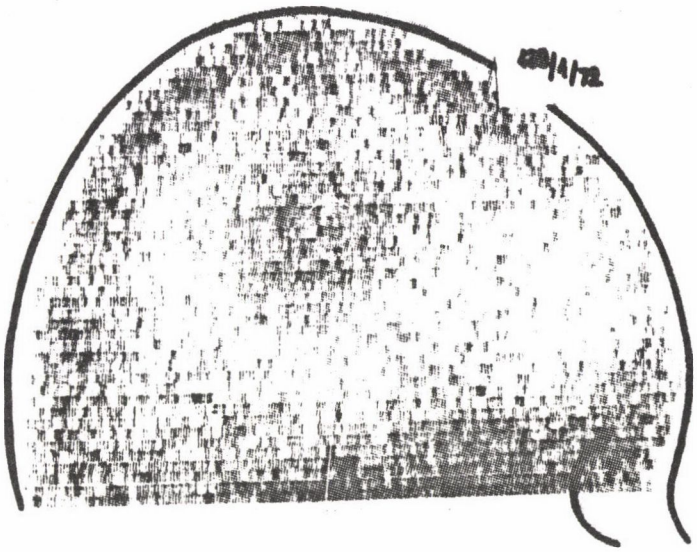
kezdtük el, az MTA Izotóp Intézetében előállitott ^{169}Yb-EDTA és ^{169}Yb-DTPA komplexekkel. A ^{169}Yb radionuklid előállitásához kezdetben természetes, majd dusitott ^{168}Yb célanyagot használtunk fel. Az atomreaktorban előállitott ^{169}Yb fajlagos aktivitása széles (1-1000 Ci/g Yb) határok között változott. Megfelelő időtartamu "hütés" mellett a ^{169}Yb-mal együtt keletkező ^{175}Yb mennyisége 0,4 %-nál kevesebb volt a gyártás időpontjában. A ^{175}Yb nuklid β- és γ-sugárzó, fizikai felezési ideje 4,2 nap, jelenléte dozimetriai szempontból érdekes.

A ^{169}Yb komplexek előállitását a szimpózium egy másik előadásában ismertettük[5]. Állatkisérletek alapján megállapihatjuk, hogy intravénás beadás után mind a ^{169}Yb-EDTA, mind a ^{169}Yb-DTPA radioaktiv komplex az extracelluláris térben gyorsan eloszlik, a szervezetben nem metabolizálódik, a veseglomerulusokon keresztül filtrációjuk a bejuttatás után rögtön megkezdődik. Biológiai félidejük emberen, normál vesemüködés mellett, kb. 2 óra. Yb-EDTA-ból és Yb-DTPA-ból a toxikus adag ezredrészénél kevesebbet adtunk testsuly kg-ként. Agytumorok kimutatására intravénásan 10-12 mCi ^{169}Yb aktivitást adtunk. A felvételeket Picker Magnascannerrel készitettük. A polienergiás γ-sugárzó ^{169}Yb energiái közül a 63 keV energiát detektáltuk finom fókuszu kollimátorral. A szcintigramokat a beadás után általában 1 óra mulva készitettük, szükség esetén a felvételeket 8-10 óra mulva megismételtük, tehát olyan időpontban, amikor a nagyerek zavaró rajzolata a felvételeken már csökkent. Az intracraniális térszükitő folyamatok kimutatására 79 betegnél szcintigráfiás vizsgálatot végeztünk. Egyéb radiofarmakonokkal összehasonlitó vizsgálatokat is készitettünk. Ezek közül 44 esetben ^{99}Tc^{m} pertechnetáttal, 17 esetben intracarotidealisan adott ^{131}I-HSA MAA-mal, 14 esetben mindkettővel.

Az agyi térszükitő folyamatok kimutatására végzett, 79 beteget felölelő vizsgálatunk során a ^{169}Yb-komplexekkel kedvező tapasztalatokat szereztünk. A ^{90}Tc^{m} pertechnetáttal szemben az az előnyük, hogy eliminációjuk a vérből gyorsabb, halmozódásuk a nyálkahártyákban kisebb, nyálmirigyekben, pajzsmirigyben nem halmozódnak. Tumoraffinitásuk hasonló értékü, mint a ^{99}Tc^{m} pertechnetáté.

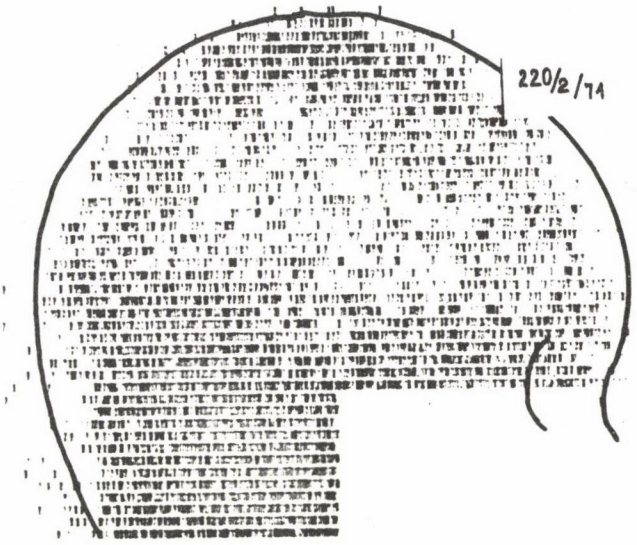
A betegek sugárterhelésének csökkentése céljából rövid biológiai félidejü ^{169}Yb-EDTA és ^{169}Yb-DTPA komplexeket alkalmaztunk agytumor-szcintigráfiás célokra. E radioaktiv fémkomplexek tumor/agy halmozási aránya kisérletes állattumoron elérte a 20:1-értéket, ami vizsgálataink során a humán agytumorok esetében is meghaladta a 4:1-et. A komplexek biológiai tulajdonságai közül a gyors glomeruláris filtrációt emeljük ki, amellyel az indikátordózis 98-99 %-a 24 óra alatt kiválasztódik. Méréseink szerint a közel 2 órás biológiai félidő 10-15 mCi aktivitások használatát teszi lehetővé. Normál vesemüködés esetén Hosain és munkatársai[4] egész testre 0,2 rad/10 mCi, hólyagra /kritikus szerv/ 3 rad/10 mCi sugárterhelést számitottak ki.

Vizsgálatainkat néhány szcintigráfiás felvétel bemutatásával illusztráljuk.



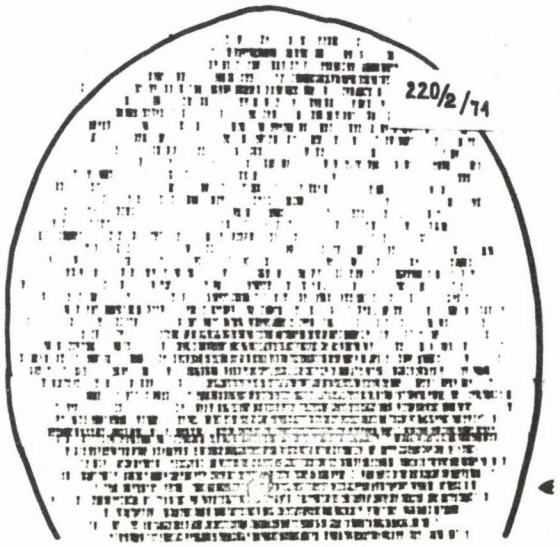
1. ábra

15 éves férfibetegről készült szcintigráfiás felvétel: a jobb centroparietális régióban elhelyezkedő ependymoma közepén meszesedés volt, amely a dusulás területén belül mint relativ hideg folt jelentkezik.



2. ábra

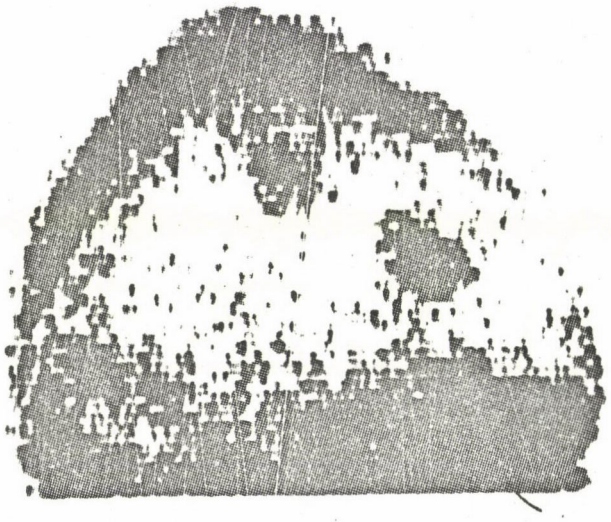
26 éves nőbetegről a beadás után 9 óra mulva készült oldalirányu felvétel. A tumorban, amely a mütétnél cerebelláris astrocytomának bizonyult, még kifejezett halmozódás mutatható ki, a nagy vénás öblök rajzolata már jelentősen csökkent.



PA

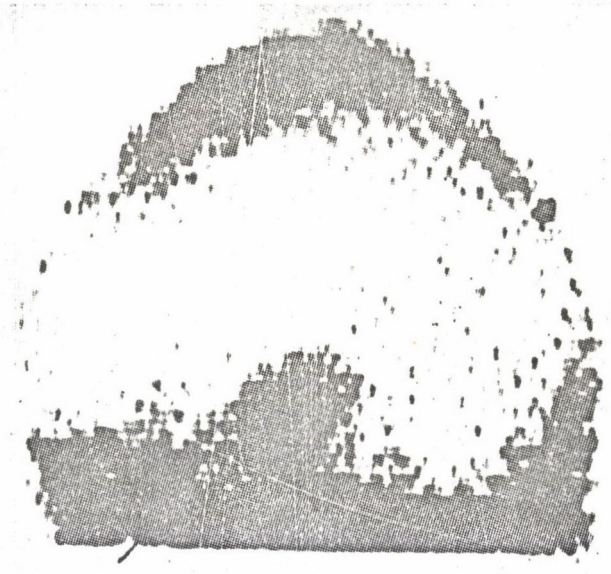
3. ábra

A posteroanterior felvételen jól látható, hogy a tumor egy része az ellenoldalra is átterjed.



4. ábra

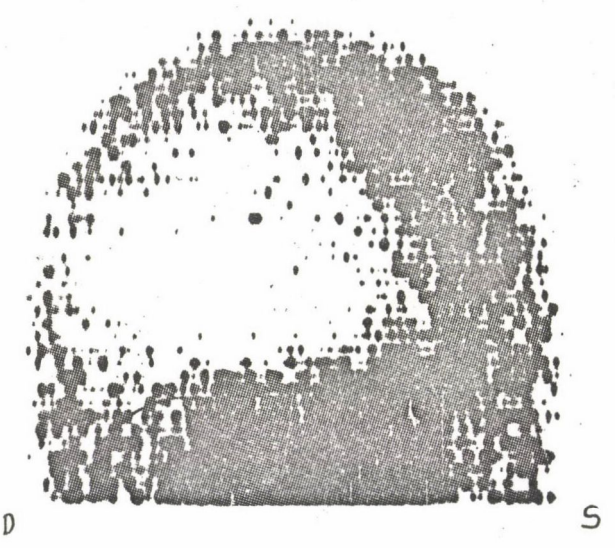
A 36 éves nőbeteg oldalirányu felvételén 3 évvel korábban eltávolitott mamma carcinomából származó metastasis látható a jobb frontális és a jobb centralis régióban.



5. ábra

Az előbbi beteg ellenoldali felvételén a bal elülső temporális régióban elhelyezkedő metastasis mutatható ki.

Haematóniában szenvedő betegek időnként tumor feltételezésével kerülnek vizsgálatra. A haematomák is kimutathatók az állományukban létrejött halmozódás alapján.



6. ábra

33 éves férfi tumor feltételezésével került felvételre. AP irányu szcintigramján baloldali subduralis haematoma jellegzetes rajzolata látható.

Vizsgálataink során a ^{169}Yb-komplexek az intravénás beadás után szövődményt, toxikus effektust, pyrogén hatást egy izben sem okoztak, és az agytumorok szcintigráfiás vizsgálatára megfelelő farmakonoknak bizonyultak. A tartós és egyszerü tárolás lehetősége különösen hasznossá teszi a ^{169}Yb-komplexeket olyan nukleáris orvosi laboratóriumok számára, ahol radionuklid generátor nem áll rendelkezésre. Kedvezőbb biológiai tulajdonságuk alapján a ^{169}Yb komplexek tökéletesen helyettesithetik a ^{203}Hg-Neohydrint az agytumor-szcintigráfiában.

IRODALOM

1. *Harper, P.V., Beck, R., Charleston, D., Lathrop, K.A.,* Nucleonics 22, /1964/ 50
2. *Pál, I., Gács, J., Törkö, J., Farkas, G.,* Int. Symp. Bad Gastein 1966 jan.
3. *Stern, H.S., Goodwin, D.A., Scheffel, U., Wagner, H.N., Kramer, H.H.,* Nucleonics 25 ,/1967/ 62
4. *Hosain, F., Reba, C.R., Wagner, H.N.,* Radiology 91, /1968/ 1199
5. *Pál I., Jász A., Kovách A., Kelemen Gy-né,* Izotóptechnika 16 /1973/412

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/440-445

ÖSSZEHASONLITÓ AGYSZCINTIGRÁFIÁS VIZSGÁLATOK RADIOAKTIV INDIUMMAL /$^{113}In^{m}$-EDTA/ ÉS RADIOAKTIV SZAMÁRIUMMAL /^{153}Sm-DTPA/

Tarján Gy.*, Pál I.**, Karika Zs.*, Füzy M.*, Szentessyné Számel I.*
*Országos Onkológiai Intézet, Budapest
**MTA Izotóp Intézete, Budapest

Felületen elhelyezkedő, kisebb tumorok jobban mutathatók ki ^{153}Sm-DTPA-val, mint $^{113}In^{m}$-EDTA-val. Gammakamerás felvételre is alkalmasabb. γ-sugárzása azonban növeli a beteg sugárterhelését, emiatt ott van jelentősége, ahol generátorokat nehéz beszerezni és üzemeltetni.

Сравнительные мозгово-сцинтиграфические исследования с помощью радиоактивного индия-113-ЭДТА и радиоактивного самария-153-ДТПА
Тарян, Дь., Пал, И., Карика, Ж., Фюзи, М., С.Самел, И.
Поверхностно расположенные, небольшие опухоли лучше наблюдаемы с помощью самария чем индия. Комплекс самария удобнее и для снятия картин гамма-камерой, однако его γ-излучение повышает лучевую нагрузку больного. Поэтому применение его рекомендуется в случае недоступности генератора индия.

Comparative Brain Scintigraphic Examinations by Means of Radioactive Indium /^{113}In-EDTA/ and Samarium /^{153}Sm-DTPA/
Tarján, Gy., Pál, I., Karika, Zs., Füzy, M., Sz.Számel, I.
Superficial, smaller tumors are detected by ^{153}Sm-DTPA better than by ^{113}In-EDTA. The samarium compound is more suitable to gamma-camera exposures, but its γ-radiation increases the radiation burden of patients, therefore it has advantages at places where nuclidic cows are hardly obtainable and used.

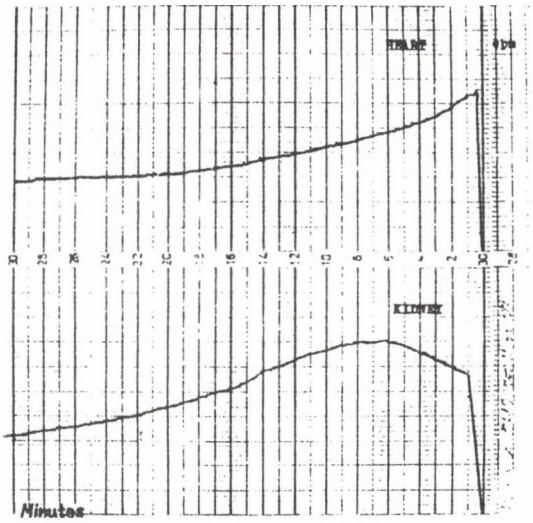
Az Országos Onkológiai Intézet izotóposztályán rutinszerüen végzünk agyi szcintigráfiás vizsgálatokat különféle radiofarmakonokkal, elsődleges és áttételes agyi tumorok kimutatása céljából.

Vizsgálataink során lehetőségünk nyilt a MTA Izotóp Intézetében előállitott különféle fémkomplexek, köztük a ^{153}Sm-DTPA klinikai kipróbálására. Jelen közleményünkben ^{153}Sm-DTPA-val végzett állatkisérletekről és $^{113}In^{m}$-EDTA-val történt előzetes összehasonlitó agyszcintigráfiás vizsgálatainkról számolunk be.

MÓDSZER ÉS EREDMÉNYEK

A ^{153}Sm-DTPA a csontvizsgálatokhoz használt ^{153}Sm-EDTA komplexhez hasonlóan állitható elő. A végtermék fajlagos aktivitása 5 mCi/ml, szabad iontartalma, papirelektroforézissel ellenőrizve, kevesebb, mint 1 %. Patkánykisérleteink szerint plazmaenzimek hatására nem bomlik le. Stabilitási állandója: log K=22.

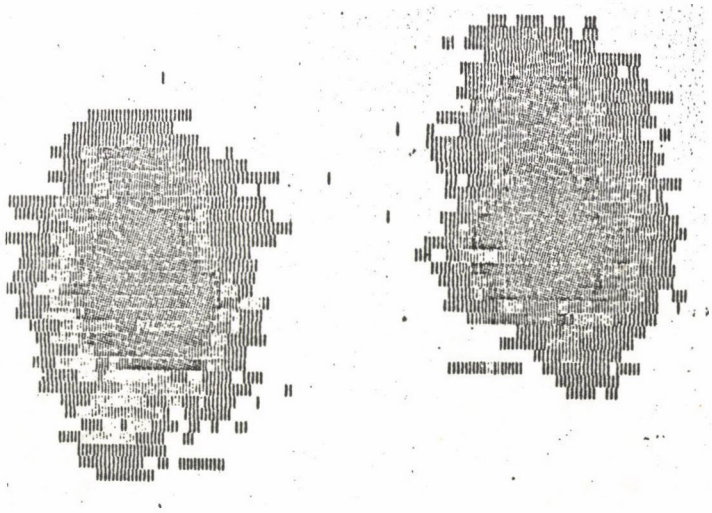
Az i. v. beadott radioaktivitás kiválasztódását szimultán a sziv és vese fölé helyezett szcintillációs detektorral és vonaliróval regisztráltuk két betegnél.



1. ábra

Szimultán clearence görbék a sziv és a vese fölött ^{153}Sm-DTPA-val mérve

A vesék felett a maximális aktivitás a beadást követően 6-8 perc mulva jelenik meg, és a rövid átfutási idő lehetővé teszi, hogy nagy érzékenységü scannerrel veseszcintigramot készithessünk.



2. ábra

^{153}Sm-DTPA-val készitett veseszcintigram

Eddig összesen 10 betegnél másfél órával 8-10 mCi ^{153}Sm-DTPA beadása után végeztünk agyszcintigráfiás vizsgálatokat SELO DS 7 Scannerrel, FC 150/15B tipusu kollimátorral. A kórisme klinikailag minden betegnél tisztázott volt, a szövettan pedig kb. az esetek 50 %-ban. A tumor tipusa és a radioaktiv halmozódás közti összefüggést táblázatban foglaltuk össze.

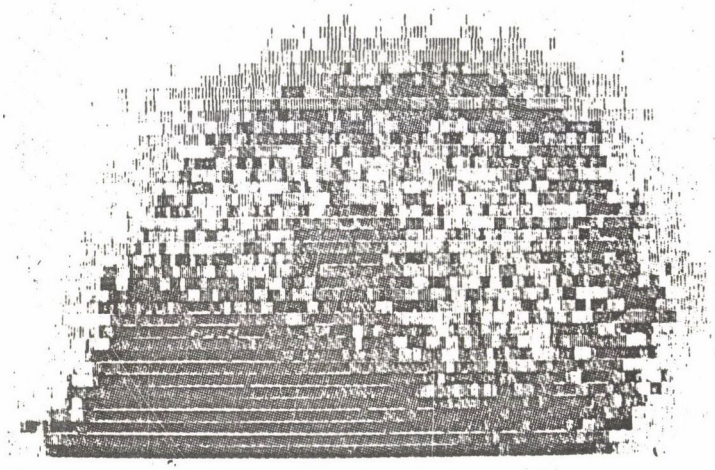
1. táblázat

Az agytumor tipusa és a radioaktiv halmozódás összefüggése betegeinknél

Diagnosis	Radioaktivitás		
	van növekedés /fő/	nincs növekedés /fő/	Összesen /fő/
Glioblastoma	6	-	6
Astrocytoma	1	-	1
Metastasis	1	2	3
Összes /fő/	8	2	10

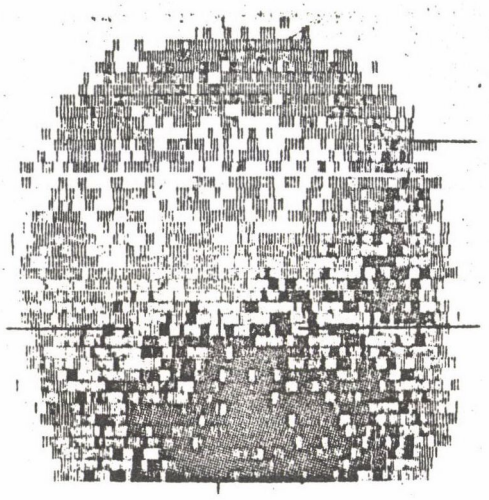
A glioblastoma minden esetben, a metasztázisok közül pedig csak egy mutatott fokozott izotópfeldusulást.

A fentiek igazolására hólyagtumoros beteg agyi metasztázisáról és glioblastomáról készült szcintigramot mutatunk be.



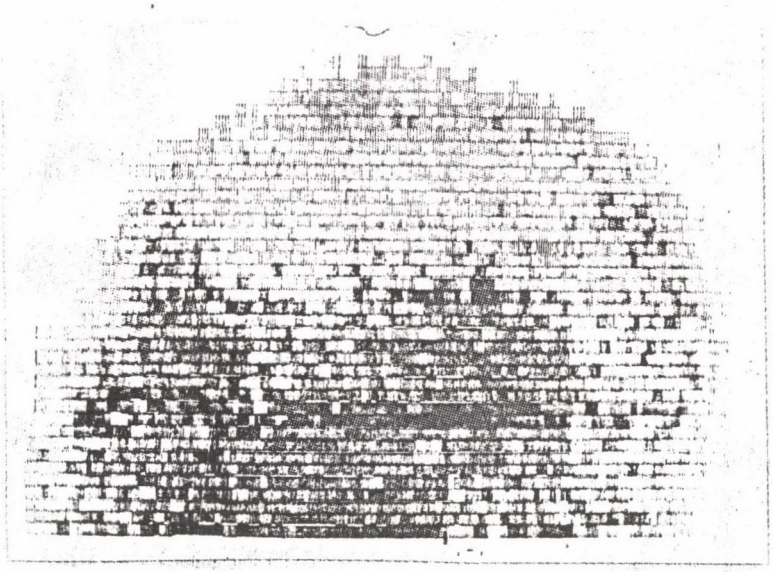
3. ábra

P. D. vesica tumoros beteg. Suprasellarisan kifejezett aktivitásfeldusulás



4. ábra

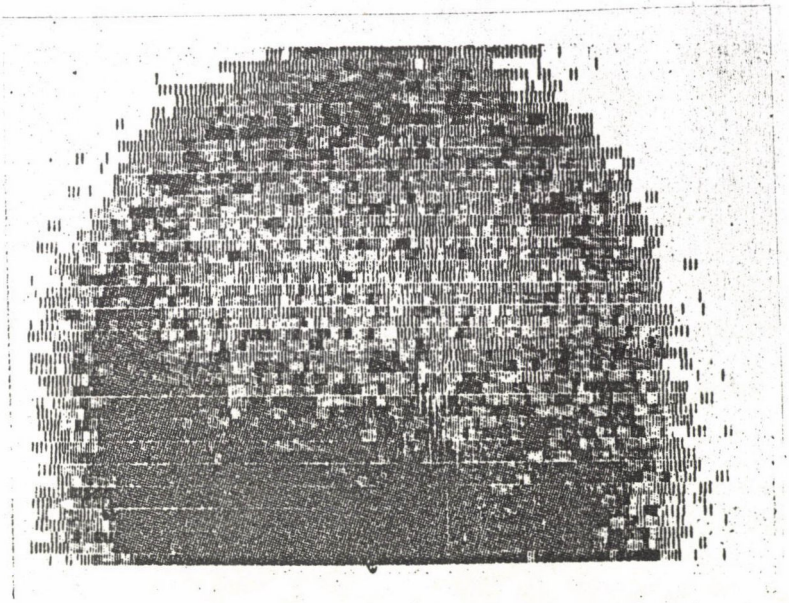
Baloldali temporo-parietalis agytumor szcintigramja frontális irányban



5. ábra

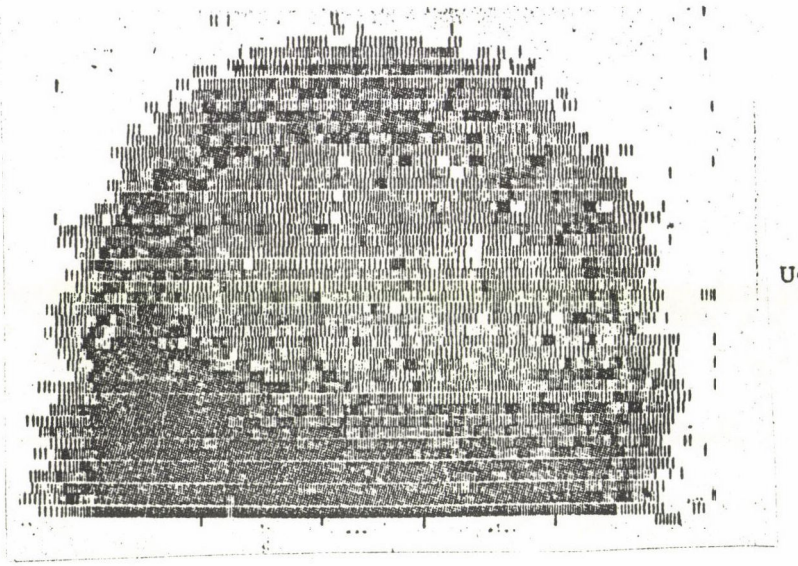
S. M. glioblastomás beteg. A frontális és oldalirányu szcintigramon baloldali temporoparietalis tumor látható

Továbbiakban két betegnél először $^{113}In^{m}$-EDTA-val, majd ^{153}Sm-DTPA-val készitettünk agyi szcintigramokat.



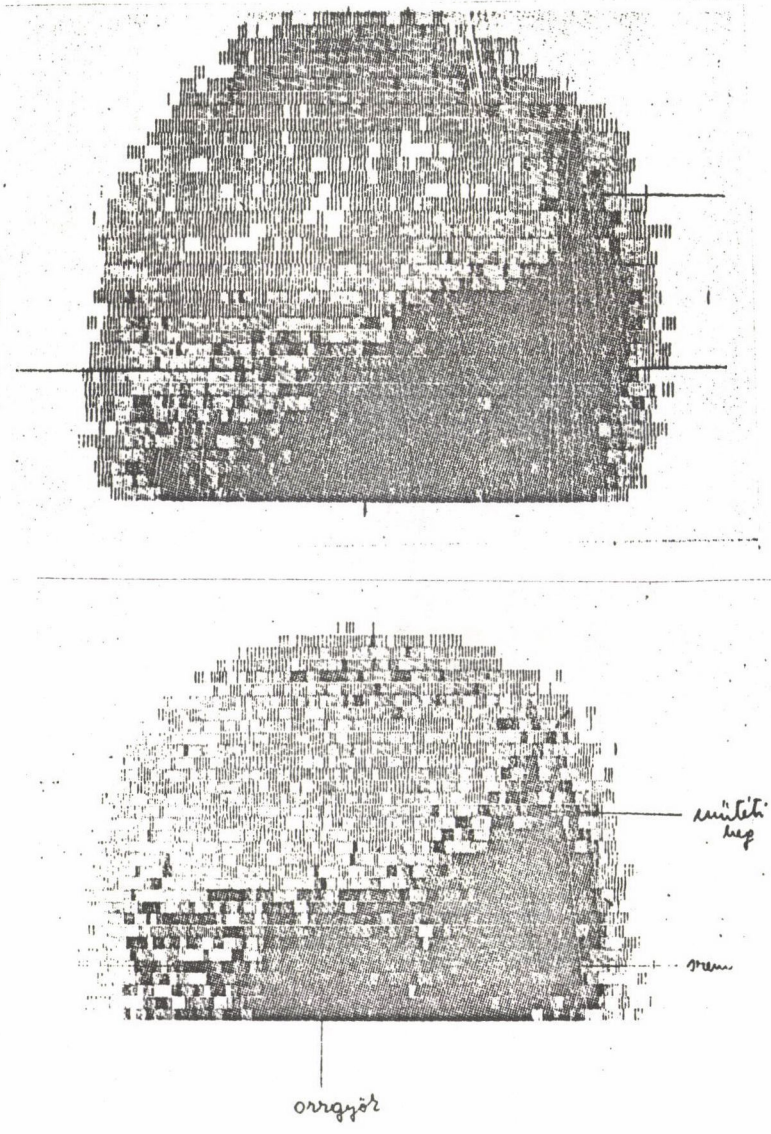
6. ábra

Jobboldali glioblastomáról ^{113}In-EDTA-val frontálisan készitett szcintigram



7. ábra
Ugyanazon esetről ^{153}Sm-DTPA-val készitett szcintigram

A jobboldalt temporalisan elhelyezkedő tumorról mindkét radiofarmakonnal készitett szcintigram nagyon hasonló.



8. ábra
Felületesen elhelyezkedő temporalis glioblastoma frontálisan, ^{113}In-EDTA-val felvett szcintigramja

9. ábra
Ugyanazon eset ^{153}Sm-DTPA-val készitett szcintigramja

A felületesen elhelyezkedő glioblastoma kifejezett izotópdusulást mutat mindkét radiofarmakonnal, a szamáriummal készitett kép azonban élesebb.

MEGBESZÉLÉS

Biológiai szempontból igen előnyös, hogy a ^{153}Sm-DTPA komplexet a plazmaenzimek nem bontják le, egyenletesen oszlik meg az extracelluláris térben, a vesékben glomerulus filtrációval gyorsan kiválasztódik. A gyors kiválasztás miatt az izotópbeadás után a vér aktivitása /testháttér/ olyan gyorsan csökken, hogy a beadás után 60 perccel igen jó minőségü szcintigramok készithetők az agyról.

A ^{153}Sm lágy γ-sugárzása /70-100 keV/ miatt nagy feloldó képességü kollimátorok használhatók, és felületesen elhelyezkedő, kisebb tumorok jobban, pontosabban mutathatók ki, mint a ^{113}In^{m}-EDTA-val. Továbbá ugyancsak lágy γ-sugárzása miatt gamma-kamerás felvételek készitéséhez is nagyon megfelelő ez az izotóp. Hátrányt jelent viszont a β-sugárzás, mely a vizsgált beteg sugárterhelését megnöveli, ezért - véleményünk szerint, - bár a ^{153}Sm-DTPA komplex fizikai és biológiai tulajdonságai ideálisak agyszcintigramok készitésére, e téren nem tudja a technécium- és indiumgenerátort kiszoritani, igy csak ott van jelentősége, ahol a generátorok beszerzésének és üzemeltetésének lehetősége nem biztositott.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/446-450

^{169}Yb-EDTA VESEDINAMIKAI VIZSGÁLATA GAMMA-KAMERÁVAL

Molnár Gy.*, Przedlacki J.**, Pál I.***
*Semmelweis Orvostudományi Egyetem III.sz. Belklinika, Budapest
**Sugárvédelmi és Radiobiológiai Központ, Varsó
***MTA Izotóp Intézete, Budapest

A glomeruláris filtráció számitására az izotóp beadását követő óra utáni sebességet helyes felhasználni. Ez alatt az idő alatt jelentős dinamikai folyamatok zajlanak le. A vizsgálati módszerrel a vizeletelvezető rendszer kóros elváltozásai /hydronephrosis, reflux/ és a veseparenchymán keresztüljutó izotóp átlagos áthaladási ideje jól meghatározhatók.

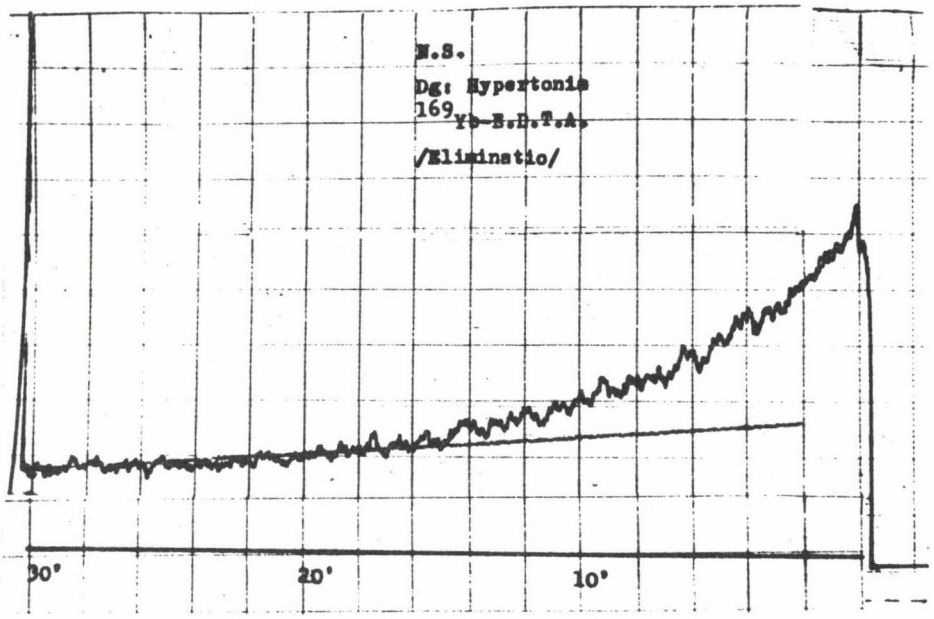
Исследование ^{169}Yb-ЭДТА-динамики почек гамма-камерой
Мольнар, Дь., Пшедлацки, Й., Пал, И.
Для вычисления клубочковой фильтрации целесообразно использовать только скорость после первого часа. Однако за этот промежуток времени проистекают значительные динамические процессы. Предложенным методом хорошо представляются патологические изменения мочеиспускательной системы /гидронефроз, рефлюкс/ а также среднее время перехода изотопа через почечную паренхиму.

Investigations on the Dynamics of ^{169}Yb-EDTA in Kidneys with Gamma-Camera
Molnár, Gy., Przedlacki, J., Pál, I.
For the calculation of glomerular filtration the velocity obtained an hour after isotope introduction is recommended to be used. During this hour important dynamical processes take place. With the method the pathologic change in urinary output system /hydronephrosis, reflux/ and the main transit time of isotope through the kidney parenchyma could be determined.

A ^{169}Yb-EDTA egyike azon komplexeknek, amelyekről előző munkáinkban egyértelmüen bizonyitottuk - ezt mások is megerősitették, - hogy csak glomeruláris filtrációval ürülnek.

Az i.v. beadás után 0 - 30 perc között a szív felett felvett kiürülési görbe /1.ábra/ két komponensből áll. Az első az izotópkomplexnek a vérben történő elkeveredéséből és az extracelluláris térbe való kilépéséből, valamint a vesén keresztüli eliminációból adódik. A második komponensben még mindig szerepet játszik az extracelluláris térben való eloszlás, azonban az idő előrehaladásával az elimináció kezd érvényre jutni. A rendelkezésre álló térben történő teljes elkeveredés - normális esetben - kb. a beadás utáni első óra végén nevezhető teljesnek, ezután a görbe esése egyenletessé válik, és csak a glomeruláris filtráció mértékétől függ.

Mérési eredményeinkből azt a következtetést vontuk le, hogy glomeruláris filtráció számitására csak az első óra után kialakuló sebességet /slope/ helyes felhasználni.



1. ábra

N.S.

Dg: Hypertonia

^{169}Yb-EDTA

/Elimináció/

Felvetődött azonban az a kérdés, hogy mi játszódik le a vesében az alatt az idő alatt, amit mi a glomeruláris filtráció számitása szempontjából figyelmen kivül hagyunk.

A probléma megközelitése céljából sorozatfelvételeket készitettünk Nuclear Chicago Gamma Pho III készülékkel.

A beadott aktivitás 100 - 300 µCi/kg között váltakozott. A felvételeket 30 másodpercig, néhány esetben 1 percig exponáltuk. 9 mCi ^{169}Yb-EDTA beadása után a mindkét vesét magában foglaló régióban 30 s alatt az összbeütésszám - 20%-os háttérlevonást és 4000 lyukas kollimátort alkalmazva - 50 000 körül volt.

Az alkalmazott ^{169}Ib-EDTA a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézetének készitménye.

Eredményeinket néhány példával demonstráljuk.

Hypertóniás beteg /2. ábra/. Urographia, vesefunkció normális.
A beadott izotóp mennyisége 9 mCi.

0 - 30 s között csak sejteni lehet a veséket, a diffuz háttéraktivitás dominál.

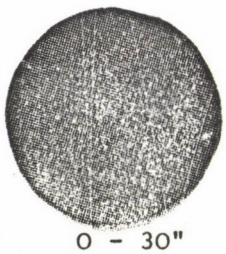
60 - 90 s között a vesék konturja már kivehető.

2 - 2,5 perc között az egész vese képe már jól kirajzolódik.

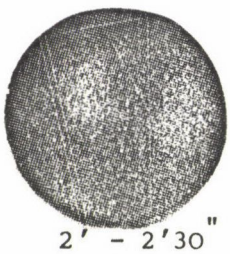
3 - 3,5 perc után a parenchyma aktivitása még kifejezettebb.

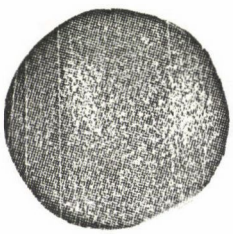
5,5 - 6 perc között már nem a veseparenchymát, hanem a pyelonban akkumulálódó izotópmennyiséget mutatja a kép.

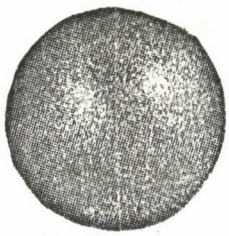
15 - 15,5 perc között a pyelon aktivitása még kifejezettebb.

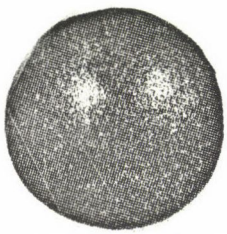

0 - 30"

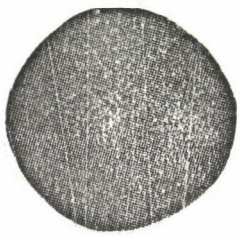

60 - 90"


2' - 2'30"


3' - 3'30"


5'30" - 6'


15' - 15'30"

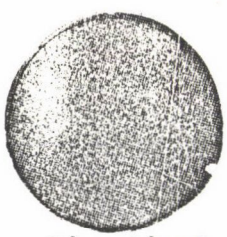

45' - 45'30"

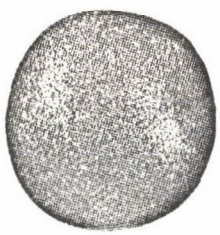
2. ábra

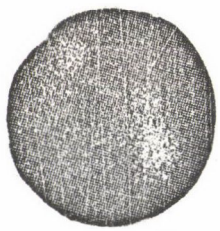
B.B. HYPERTONIA

^{169}Yb-EDTA

45 - 45,5 perc között a veseparenchyma már egyáltalán nem látszik, a pyelon aktivitása is jelentősen csökkent.


3' - 3'30"


15' - 15'30"


60' - 60'30"

3. ábra

L.A. STENOSIS URETERI l.d.

HYDRONEPHROSIS l.d.

^{169}Yb-EDTA

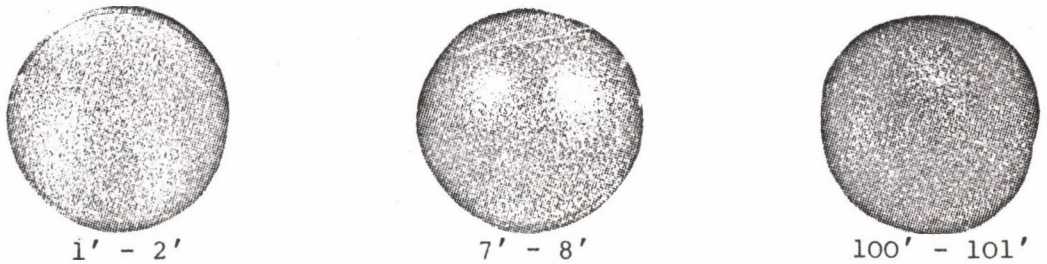
Betegünknek /3. ábra/ jobboldali ureterszükülete és következményes hydronephrosisa volt.

Az első felvétel 9 mCi beadása után 3 - 3,5 perc között készült. Látható, hogy a bal vese jól, a jobb alig ábrázolódik.

15 - 15,5 között az intenzitás mindkettőben azonos.

60 - 60,5 perc között jobb oldalon kifejezett, bal oldalon minimális aktivitást látunk.

Jobb oldalon a késve mutatkozó megjelenés és a pyelonban egy óra mulva is meglévő aktivitás teljes összhangban van a klinikai képpel.



4. ábra

B.M. PYELON et URETER DUPLEX l.s.
REFLUX VESICO-URETERALIS l.s.
^{169}Yb-EDTA

Egy másik esetünkben /4. ábra/ mindkét vesében megjelent az izotóp az 1.-2. perc között.

A 7.-8. percben mindkét pyelonban jó akkumuláció mutatkozik, a bal pyelon nagyobbnak látszik.

100.-101. perc között baloldalon még mindig jól látható a pyelonban levő izotóp mennyiség.

A jelenség magyarázata baloldal kettős pyelon és ureter, valamint baloldali vesico-ureterális reflux.

Jelen előadásunknak nem az a célja, hogy különböző kóros vesefolyamatokat részletesen elemezzünk gamma-kamerával kapható adatok alapján. Az említett eseteket csak példának szántuk. Szeretnénk azonban - nemcsak a fent említett 3 eset alapján - néhány általános következtetést levonni.

Megállapithattuk, hogy a ^{169}Yb-EDTA alkalmas gamma-kamerával történő vizsgálatra.

Mivel ez a komplex *nem* aktiv sejttevékenység révén, hanem tisztán fizikai tényezők alapján ürül a vesén keresztül, a vesében történő megjelenése a vérellátás, közelebbről a szürő apparátus - a glomerulusok - állapotának függvénye.

A vizsgálati módszer a vizeletlevezető rendszer kóros elváltozásait - az emlitett példákban hydronephrosis, illetve reflux - jól demonstrálja.

Ezeken tulmenően vizsgálhatjuk a veseparenchymán keresztüljutó izotóp átlagos áthaladási idejét /mean transit time/, melynek különböző kórfolyamatokban lehet jelentősége.

A bemutatott felvételek alapján nyilvánvaló, hogy bevezetőben emlitett, szív felett regisztrálható görbének a glomeruláris filtráció számitása szempontjából elhanyagolt első 30 percében igen jelentős dinamikai folyamatok zajlanak le a vesében.

Megállapithatjuk azt is, hogy a steady state állapot - gamma-kamerás vizsgálataink szerint is - kb. az izotóp beadása után egy óra mulva következik be. Ekkor a vesében sem a parenchymában, sem a pyelonban nincs akkumuláció - hacsak kóros viszonyok nem állnak fenn.

A továbbiakban gyümölcsözőnek látszik az a gondolat, hogy a gamma-kamera lehetőségeit képtároló és számitógép felhasználásával részletesebb analizis céljára használjuk fel. Ebben a vonatkozásban az irodalomban már találunk eredményeket.

Ugyancsak a jövő feladatainak körébe kell sorolnunk a kettős jelzéssel /tubuláris és glomeruláris kiválasztódásu jelzett anyagok/ történő vizsgálatokat, melyek nemcsak a teljes veséről, hanem tetszőlegesen kiválasztott területéről adhatnak a mai klinikai lehetőségeknél lényegesen több információt.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/451-455

^{169}Yb-KOMPLEXEK ALKALMAZÁSA CISZTERNOGRÁFIÁRA ÉS MYELOSZCINTIGRÁFIÁRA

Pál I.*, Simkovics M.**, Zoltán L.**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest
**Országos Idegsebészeti Tudományos Intézet, Budapest

72 beteg vizsgálatának eredményei.
Применение комплексов ^{169}Yb в цистернографии и миелографии
Пал, И., Шимкович, М., Зольтан, Л.
Результаты испытаний, совершенных на 72 больного.
Use of ^{169}Yb Complexes in Cysternography and Myeloscintigraphy
Pál, I., Simkovics, M., Zoltán, L.
Results in the examinations of 72 patients.

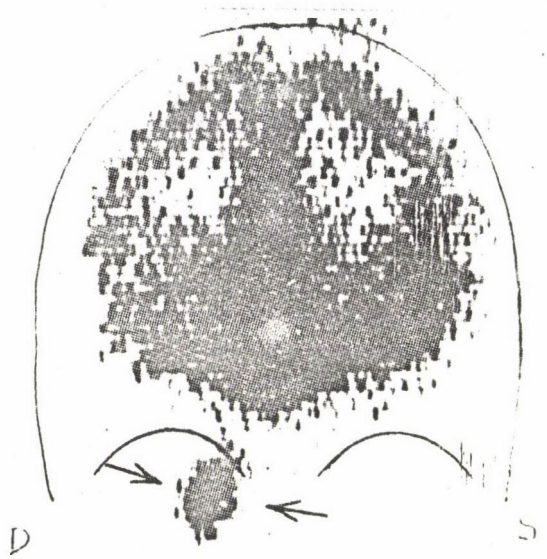
A radioizotópos ciszternográfia az intracranialis liquortér vizsgálatára kidolgozott szcintigráfiás módszer, amelynek során a liquortérbe juttatott, a liquorral elkeveredett radiofarmakon áramlását és felszivódását sorozatban készitett felvételekkel követjük. A liquor az agykamrákban termelődik, innen a subarachnoidealis térbe jut a basalis ciszternákba, onnan a convexitason át a parasagittalis regio felé normál utvonalat és normál ütemet követve áramlik. A módszer előnye, hogy az áramlási és felszivódási viszonyok vizsgálatát biztositja anélkül, hogy a liquorkeringést számottevő mértékben befolyásolná. Fő alkalmazási területe a liquordinamikai zavarok vizsgálata és a liquorsipolyok helyének kimutatása. A módszert Di Chiro és munkatársai dolgozták ki 1964-ben[1]. Vizsgálataikat ^{131}I-HSA-val, majd a későbbiekben ^{99}Tc^{m}-HSA-val végezték. Wagner és munkatársai[2] 1970-ben ^{169}Yb-DTPA alkalmazását vezették be, hogy elkerüljék a liquortérbe juttatott fehérje által okozott mellékhatásokat.

A myeloszcintigráfiás eljárás a gerinccsatorna térszükitő folyamatainak vizsgálatára szolgál. A térszükitő folyamat a liquorteret beszükiti, igy a laesio magasságában a környezethez viszonyitva csökkent a liquor mennyisége,

ezzel együtt a liquortérbe juttatott és a liquorral elkeveredett radiofarmakon mennyisége is, ezért a laesio helyén hideg folt mutatható ki a szcintigramon. A módszert Bauer és Yuhl vezette be 1957-ben[3]. Vizsgálataikat ^{131}I-HSA-val végezték.

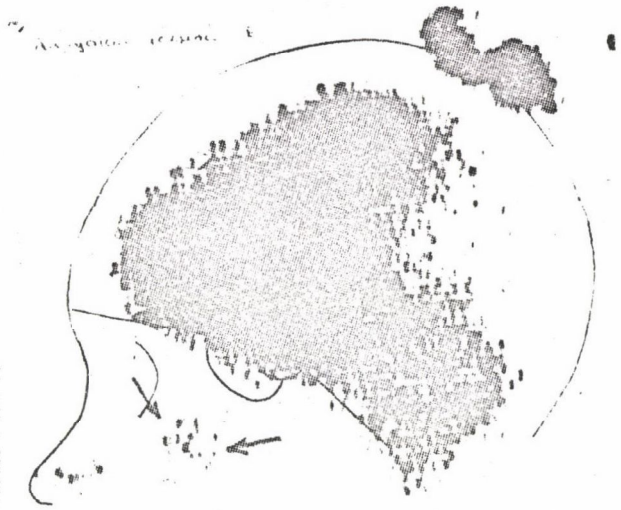
Az intracranialis és spinalis liquortér vizsgálatára 1972 március óta alkalmazunk nagy fajlagos aktivitásu ^{169}Yb-mal jelzett komplexeket. A ^{169}Yb-EDTA és ^{169}Yb-DTPA komplexek steril, izotóniás, pirogénmentes, pH = 6-7-es oldatát használtuk, 1-3 mCi/ml radioaktiv koncentráció mellett. A ^{169}Yb fajlagos aktivitása 200-1000 mCi/mg Yb között változott, a bejuttatott radiofarmakonban a komplexképző mennyisége kb. 100 mikrogrammnyi volt. A liquortérből kiáramló ^{169}Yb-komplexek az extracelluláris térben eloszlanak, és a veseglomerulusokon keresztül gyorsan filtrálódnak. A ciszternográfiás vizsgálathoz cisternapunctio vagy lumbalpunctio utján 1 mCi ^{169}Yb-komplexet adtunk be, liquorral keverve. Myeloszcintigráfiás vizsgálat céljára általában lumbalisan alkalmaztuk, az előbbi módon, a nyaki gerincszakasz vizsgálatára cisternalisan juttattuk be hyperbarikus dextróze oldatban. Felvételeinket Picker Magnascannerrel készitettük. A ciszternográfiás vizsgálatoknál a 63 keV, a myeloszcintigráfiánál pedig a 177-198 keV energiáju γ-sugárzást detektáltuk. A ciszternográfiás felvételeket a radiofarmakon bejuttatása után 2-4, 6, 24, 48 óra mulva készitettük, a myeloszcintigráfiás felvételeket lumbalis bejuttatás után átlag 5 óra, ciszternális beadás után 2 óra mulva készitettük. Egy év alatt 26 ciszternográfiás és 36 myeloszcintigráfiás vizsgálatot végeztünk.

Vizsgálataink eredményeit néhány felvétellel illusztráljuk.



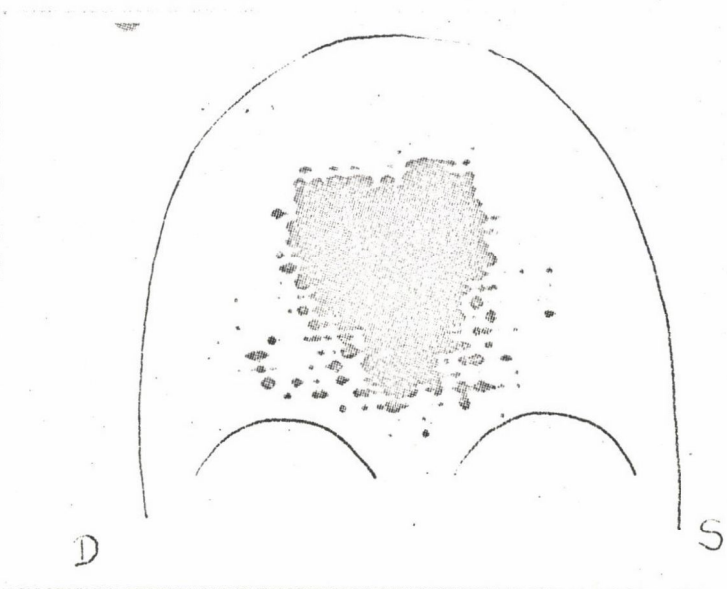
1. ábra

28 éves nőbeteg 12 órás ciszternográfiás felvétele. 10 éves korában érte koponyatrauma. 14 éves korától jelentkezett ismétlődő liquorcsorgás jobb orrnyilásából. 17 éves korától ismételten meningitisen esett át, összesen 7 izben. A cisternopunctio utján beadott radiofarmakon eloszlott a liquortérben, és normális utvonalát követve áramlott a liquorral a basilis cisternákon, fissura interhemisphaericán és a fossa Sylvii-n át a convexitas felé. A liquorral kevert radiofarmakon egy része a jobb orrüregbe jutott.



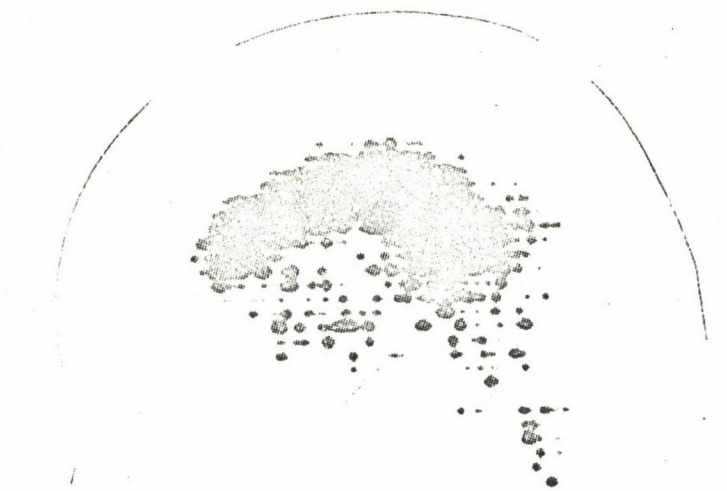
2. ábra

Az oldalirányu felvételben látható, hogy a garatba és az orrnyilásba a liquor a sinus sphenoidealison keresztül jut el. Ennek megfelelően a sipoly zárása transnasalis-transsphenoidealis mütéttel történt. A felvétel érdekessége még, hogy a beteg vizsgálat előtt az orrához, majd a hajához nyult, ezzel kontaminálta a haját, ez a felvételen extracranialis folt alakjában kimutatható.



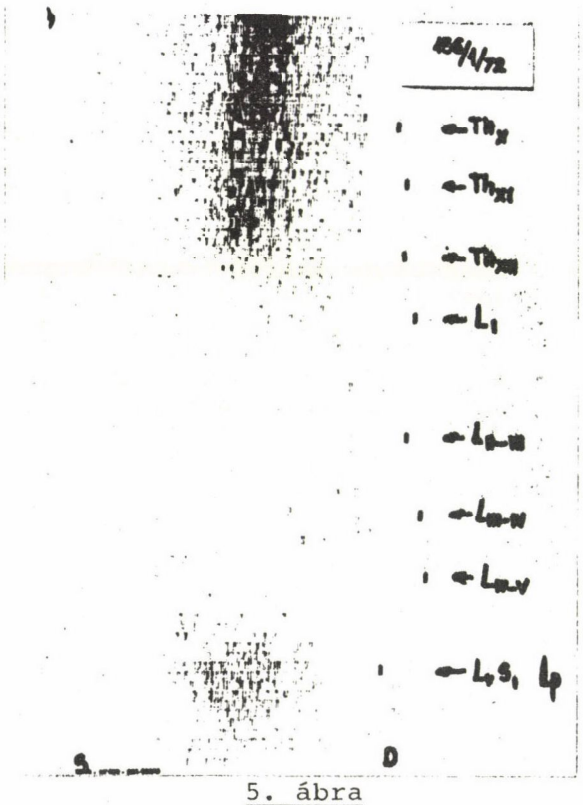
3. ábra

29 éves férfibeteg 5 órás ciszternográfiás felvétele. A cisternapunctio utján beadott radiofarmakon a normál utvonal helyett a kamrarendszerbe áramlott, amely a normotensios hydrocephalus jellegzetes ciszternográfiás lelete. A radiofarmakonnak mindössze csekély hányada áramlott a fossa Sylvii-be.



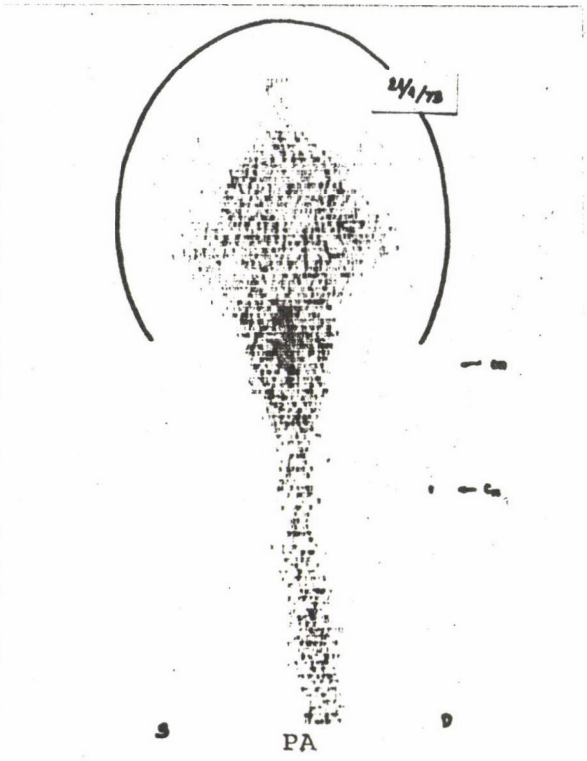
4. ábra

Az oldalirányu felvételen kirajzolódik a kamrarendszer, elsősorban az oldalkamrák alakja, a radiofarmakon kisebb része a basalis cisternákban van.



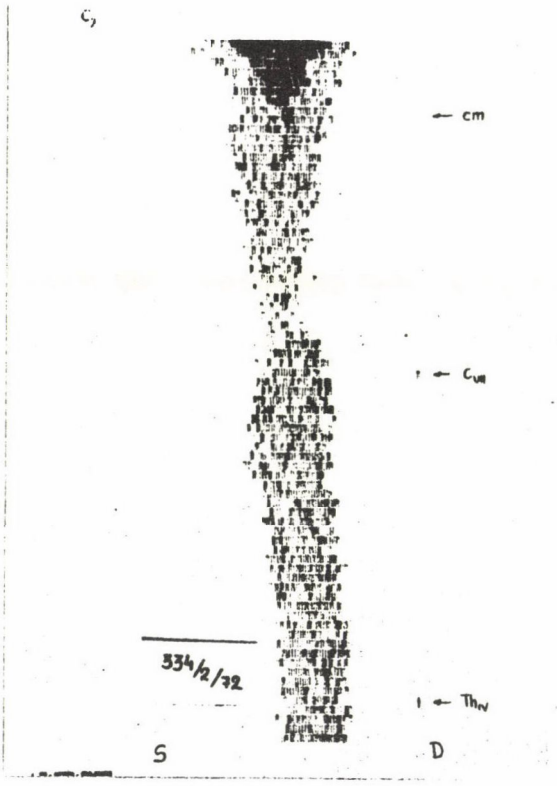
5. ábra

Gyöngyfüzérszerüen elhelyezkedő, többszörös caudatumor /chordoma/ kiterjedésének a meghatározását két radiofarmakon alkalmazásával végeztük el. Az alsó lumbalis szakaszon beadott ^{133}Xe oldat a tumoros terület alsó határánál, a ciszternálisan beadott ^{169}Yb-komplex pedig a felső határánál akadt el.



7. ábra

30 éves nőbeteg cervicalis myeloszcintigramja a ciszternális bejuttatás után 2,5 óra mulva. Az alsó cervicalis szakaszon az aktivitásszint mérsékelt foku, elmosódott határu csökkenése a liquortér kisfoku beszükülésére utal.



6. ábra

58 éves férfibeteg posteroanterior irányu cervicalis myeloszcintigramja, amely a ^{169}Yb-DTPA ciszternális bejuttatása után 3 óra mulva készült. A radiofarmakon a liquorral elkeveredett, a szcintigramon a gerinccsatorna kirajzolódott. Az ötödik és hatodik nyakcsigolya közötti magasságban körülirtan hideg folt látható. A mütétnél jobb oldali discus hermia volt található az emlitett porckorongnak megfelelő magasságban.

Tapasztalataink alapján nagy fajlagos aktivitásu ^{169}Yb komplexek alkalmazása ciszternográfiás és myeloszcintigráfiás vizsgálatokra szinvonalas felvételek készitését teszi lehetővé. A ^{169}Yb radionuklid fizikai jellemzői alapján alkalmas arra, hogy a rutinszerüen használt kollimátorokkal jó feloldásu szcintigramokat kapjunk. A ^{169}Yb-komplexek kezdeti 10-14 órás biológiai és 32 napos fizikai félideje lehetőséget nyujt 48 és 72 órás kontrollvizsgálatok elvégzésére is. A ^{169}Yb-komplexek in vitro és in vivo is stabilak, 500 körüli molekulasulyuk a cerebrospinális liquortérből relative gyors felszivódást biztosit. Alkalmazásukkal vizsgálhatjuk a liquordinamikai zavarokat, meghatározhatjuk a liquorsipolyok helyét, és kimutathatjuk a spinális térszükitő folyamatokat is. A 62 beteget felölelő vizsgálatunk során nem tapasztaltunk pyrogénreakciót, toxikus effektust vagy egyéb kedvezőtlen mellékhatást. A ^{169}Yb-komplexek nagy kémiai stabilitása és 32 napos fizikai felezési ideje hosszu tárolásra és igy állandó felhasználásra ad lehetőséget.

IRODALOM

1. *Di Chiro, G., Reames, P.M., Matthews, W.B.*, Neurology 14, /1964/ 185
2. *Wagner, H.N., Hosain, F., DeLand F.H.* Radiology 95, /1970/ 121
3. *Bauer, F.K., Yuhl, F.T.*, Int.J.Appl.Rad.Isotopes 2 /1957/ 52

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/456-459

EXTRACELLULÁRIS FOLYADÉKOK VIZSGÁLATA RADIOAKTIV FÉMKOMPLEXEKKEL

Pál I.*, Molnár Gy.**, Szilvási I.**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest
**Semmelweis Orvostudományi Egyetem III. sz. Belklinikája, Budapest

Az in vivo stabil, radioaktiv fémmel jelzett EDTA és DTPA reálisan mutatja a szervezet extracelluláris folyadéktartalmát.

Исследование экстрацеллюлярного пространства радиоактивными металлокомплексами.
Пал, И., Мольнар, Дь., Сильваши, И.
Стабильным в in vivo условиях, меченным радиоактивным металлом ЭДТА и ДТПА реально определимо внеклеточное содержание воды.

Investigation of Extracellular Liquids by Radioactive Metal Complexes
Pál, I., Molnár, Gy., Szilvási, I.
The in vivo stabile EDTA and DTPA labelled with radioactive metals give a real picture of the extracellular liquid content of the organism.

A szervezet só- és vizforgalmának in vivo tanulmányozása kórélettani szempontból igen fontos. A felnőtt szervezet összsulyának mintegy 70%-a viz, amely részben intracellulárisan, részben extracellulárisan helyezkedik el. Ez a felosztás annál is inkább jogos, mivel a két tér elektrolit összetétele is lényegesen különbözik. Az extracelluláris tér /folyadék/, és az intracelluláris tér /folyadék/ összege az összvizteret adja. A szervezetben valamennyi tér dinamikus egyensulyban áll a többi térrel; az egyik tér összetevőiben beállott változás kihat a másik tér egyensulyi állapotára is.

Extracelluláris folyadékon a szervezet össz-vizmennyiségének azt a részét értjük, amely a sejteken kivül helyezkedik el. A plazma és az interszticiális tér folyadéka mellett ide soroljuk a kollagén és a kötőszövetben lévő vizet, valamint a transzcelluláris térben lévő vizet is /liquor, agykamra, amnion/. A transzcelluláris viz mennyisége általában elhanyagolható, az extracelluláris tér 2-4%-a. Az extracelluláris tér meghatározására a következő farmakológiai tulajdonságokkal rendelkező vegyületek alkalmasak[1]:

a/ a vegyület gyorsan és egyenletesen diffundáljon az extracelluláris tér /ECT/ valamennyi komponensében;
b/ sejtekbe ne hatoljon be;
c/ ozmotikus hatása elhanyagolható legyen;
d/ ne metabolizálódjon;
e/ eliminációja a szervezetben mérhető legyen;
f/ ne legyen toxikus;
g/ mérése egyszerü legyen.

Az ECT mérésére alkalmazott inaktiv vegyületek a következők: tiocianát, mannitol, inulin, saccharose, stb. Hátrányuk, hogy infúzióban kell adagolni, az anyagcserében kismértékben résztvesznek.

Az extracelluláris tér mérésére a következő radioaktiv vegyületek alkalmazhatók: ^{24}Na, ^{82}Br, $Na_2{}^{35}SO_4$, ^{3}H- és ^{14}C-jelzett mannitol, inulin stb. Mivel ezen radioaktiv gyógyszereknek az extracelluláris folyadéktérre vonatkozó farmakológiai tulajdonságai eltérőek, ezért szokás "inulin-térről", "Na-térről" beszélni.

A szervetlen és a nagy molekulasulyu anyagok között helyezkedik el az EDTA/etilén-diamin-tetraacetát/ és a DTPA/dietilén-triamin-pentaacetát/, amely farmakológiai tulajdonságai alapján megfelelő extracelluláris ágensnek mutatkozott Foreman vizsgálatai szerint[2]. A radioaktiv fémkomplexek farmakológiai tulajdonságainak vizsgálata során megállapitottuk, hogy az EDTA-val és DTPA-val képezett radioaktiv fémkomplexek egy része az in vitro tapasztalt és mért nagy kémiai stabilitást az élő szervezetben is megtartják: ^{51}Cr-EDTA, -DTPA, $^{115}In^{m}$-EDTA, -DTPA, $^{114}In^{m}$-EDTA, -DTPA, ^{58}Co-DTPA, ^{169}Yb-EDTA, -DTPA, ^{153}Sm-DTPA, azaz az inulinhoz hasonlóan az eloszlási terük az extracelluláris tér, változatlan kémiai formában glomerulárisan filtrálódnak. Az in vivo instabil fémkomplexek a szervezetben komplexképzőre és kationra bomlanak. A kation biokémiai jellegének megfelelően halmozódik a kritikus szervekben, pl: a ^{197}Hg-EDTA a vesében, a ^{64}Cu-EDTA a májban és vesében, a ^{153}Sm-EDTA a csontban. Az in vivo stabil komplexekkel klinikai vizsgálatokat végeztünk az extracelluláris folyadéktér meghatározására. Módszerünk azon alapult, hogy az intravénás adás után 1-2 órával a radioaktiv fémkomplexek egyenletesen eloszlanak a rendelkezésre álló térben, amelyből a vesén keresztül glomerulárisan filtrálódnak. A radioaktiv fémkomplexekből általában 0,5 ml térfogatban $^{115}In^{m}$-ból 70 µCi, ^{51}Cr-ból 200 µCi, ^{58}Co-ból 20 µCi, ^{169}Yb-ből 30 µCi, $^{114}In^{m}$-ból 30 µCi aktivitást adtunk intravénásan. Számitási metódikánk a következő:

$$V = \frac{I}{C_o}$$

ahol

V - a megoszlási tér /ECT/

I - a beadott aktivitás cpm-ben, standard

C_o - a t_o időre extrapolált 1 ml plazma beütésszáma cpm-ben;

$$C_o = C_t e^{kt} \qquad k = \frac{0,693}{T_{1/2}} \qquad T_{1/2} = \frac{0,301\ \Delta t}{\lg A - \lg B}$$

ahol

C_t - t időben mért plazma aktivitás cpm-ben

k - eliminációs faktor

$T_{1/2}$ - eliminációs félidő

Δt - az A és B időpontok különbsége

A és B - az A és B időpontban levett plazma aktivitása cpm-ben

A számításhoz szükséges két vérmintát az 1., illetve a 2. órában vettük le. 5 ml plazmában üreges kristály és energiaszelektiv számláló segitségével határoztuk meg a plazma fajlagos aktivitását. A beadott mennyiséggel azonos aktivitást 1000 ml desztillált vizben higitottunk, és ebben 1 ml-t használtunk a standard /I/ számításához.

A vizsgálatokat 150 normál, 126 diabetes mellitusban szenvedő, 450 hypertóniás és 176 vesebetegen végeztük. Ezen kivül 26 100 kg körüli "kórosan kövér" és 73 45 kg-nál kisebb testsulyu, "kórosan sovány" beteg extracelluláris terét hasonlitottuk össze.

1. táblázat

Extracelluláris tér értéke testsuly %-ban

	Vizsgálatok száma	Nő	Férfi	ECT /testsuly %/ S.E.	Megjegyzés
Normál átlag	150	93	57	24,98±0,47	
Idős normál	58	30	28	26,36±0,90	>50 év
Fiatal normál	92	63	29	23,61±0,49	20-30 év
Diabetes mellitus	126	82	44	24,21±0,50	
Hypertonia	456	292	164	23,47±0,24	
Pyelonephritis chronica	120	-	-	24,90±0,52	
Glomerulonephritis chronica	19	-	-	26,70±2,17	
Nephrolithiasis	37	-	-	23,80±0,56	
"Kövér"	26	-	-	17,58	testsuly≥100kg/felnőtt/
"Sovány"	73	-	-	30,83	testsuly~45kg/felnőtt/

A radioaktiv fémkomplexek farmakológiai vizsgálatánál az eloszlásra olyan adatokat is kaptunk, amelyek szerint a transzcelluláris térben az eloszlás

lassu /$T_{1/2}$=10-24 óra/, igy adataink az általunk elnevezett "funkcionális" extracelluláris tér-"EDTA-térre" vonatkoznak.

Oedémás betegeinken /cardiális decompensatio, nephrosis syndroma, ascitessel járó májcirrhosis/ az extracelluláris teret az oedema mértékétől függően a testsuly 32-48 % között találtuk. Megjegyezzük, hogy ilyen esetekben a teljes eloszlás érdekében a vérmintákat intravénás adás után 3-5 óra között vettük.

Tapasztalataink szerint normál egyénekben, valamint különböző betegségcsoportokban az EDTA, DTPA megoszlási terét olyan értékünek találtuk, amely megfelel az extracelluláris tér értékének. Ezek alapján az a véleményünk, hogy az in vivo stabil, radioaktiv fémmel jelzett EDTA és DTPA radioaktiv gyógyszerek reálisan tükrözik a szervezet extracelluláris folyadéktartalmát.

IRODALOM

1. *Gouldo, M. Schartz, I.L., Lewitt, M.F.,* Amer. J. Physiol. 157, /1949/ 387
2. *Foreman, H., Vier, M., Magee, J.,* J. Biol. Chem. 203, /1953/ 1045

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/460-464

RADIOAKTIV SZAMÁRIUM-KOMPLEX /^{153}Sm-EDTA/ A CSONT SZCINTIGRÁFIÁS VIZSGÁLATÁBAN

Karika Zs.*, Pál I.**, Tarján Gy.*, Füzy M.*, Nyul Tóth P.***
*Országos Onkológiai Intézet, Budapest
**MTA Izotóp Intézete, Budapest
***Fodor József Gyógyintézet, Budapest

A komplex egyszerüen állitható elö, olcsó. Toxikus hatása nincs. γ-sugárzása jól detektálható. A test sugárterhelése 40%-a a ^{85}Sr sugárterhelésének. Hátránya, hogy β-sugárzása felesleges sugárterhelést jelent, s rövid felezési ideje miatt reaktortól távol nehezen használható.

Применение радиоактивного комплекса самария-153-ЭДТА в сцинтиграфии кости
Карика, Ж., Пал, И., Тарян, Я., Фюзи, М., Ньюл-Тот, Т.
Дешевый и просто получимый комплекс не имеет токсичного влияния, энергия его γ-фотона хорошо детектируется, нагрузка на кости составляет лишь 40% нагрузки от ^{85}Sr. Недостаток у него, что он имеет и β-излучение, и сравнительно короткий полураспад затрудняет его применение далеко от реактора.

Application of Radioactive Samarium Complex /^{153}Sm-EDTA/ in the Scintigraphy of Bones
Karika, Zs., Pál, I., Tarján, A., Füzy, M., Nyul Tóth,P.
The low price, simply preparable complex has not any toxic effects. Its well detectable γ-radiation gives 60% lower burden to the patient than the ^{85}Sr. Owing to the burden from its β-radiation and its low half life complex could be used only in the vicinity of nuclear reactor.

Az izotópdiagnosztikai vizsgálatok kiterjesztése, valamint az eredmények javitása iránti igény ujabb és ujabb radiofarmakonok előállitására ösztönzi a kutatókat.

Munkacsoportunk a ritka földfémek komplexeit tanulmányozta olyan csontkereső vegyület előállitása céljából, amelynek diagnosztikai értéke nem marad el a radioaktiv stroncium /^{85}Sr/ mögött, sőt annál kedvezőbb sugárfizikai tulajdonságokkal rendelkezik. Vizsgálataink során a ^{153}Sm-EDTA bizonyult ilyen vonatkozásban kedvező tulajdonságu radiofarmakonnak.

A radioaktiv szamáriumot atomreaktorban történő aktiválás eredményeként kapjuk spektráltiszta szamárium-oxidból /Sm_2O_3/. Az elérhető fajlagos aktivitás 30-50 Ci/g Sm.

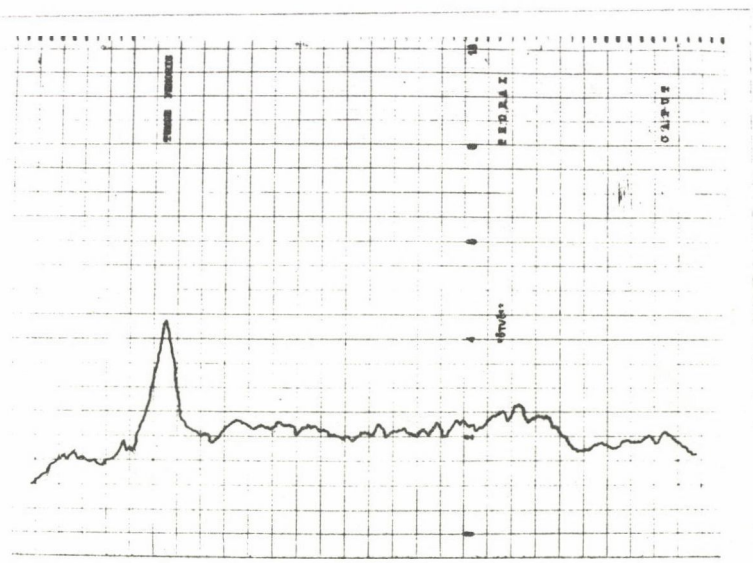
A további kémiai preparálás során $^{153}SmCl_3$ oldathoz /conc.:0,5-1,5mg Sm/ml/ 1:20 mol arányban 20 %-os steril Na_2Ca-EDTA oldatot adunk, majd miután $NaHCO_3$-mal a készitményt pH:6-7-re állitjuk be, fiziológiás NaCl-dal olyan mértékben higitjuk, hogy a végtermék radioaktiv koncentrációja 3 mCi/ml legyen.

A ^{153}Sm-EDTA biológiai viselkedését patkányokon vizsgáltuk. Azt tapasztaltuk, hogy más fémkomplexekhez hasonlóan ebben az esetben is a stabilitási állandónak van döntő jelentősége. Mivel a ^{153}Sm-EDTA közepes stabilitási állandóju komplex /log K:12-17/, intravénás beadása után a fém szamárium a komplexképzőről enzimatikus uton lehasad, és beépül a csontokba, a kalciummal történő kicserélődés utján. Sorozatos vérvételekkel megállapitottuk, hogy a készitmény eltünési félideje a vérből /clearence/ az első fázisban 10 perc, a második fázisban pedig 90 perc. Huszonnégy órával a beadás után a beadott aktivitás 50 %-a van a csontrendszerben, mig 5 %-a a májban és vesékben mutatható ki.

Meg kell még mondani, hogy a szamárium beépülését a csontokba csökkenti az a körülmény, hogy egy része a plazmafehérjékhez kötődik. Ezt a folyamatot ellensulyozni lehet, ha az előállitás során a készitményhez kalcium-glukonátot is adunk.

Állatkisérleteink során tájékozódtunk a ^{153}Sm-EDTA toxicitásáról is. E célból a patkányoknak a tervezett maximális humán dózis /0,01 mg Sm/testsuly kg/ ötezerszeresét adtuk, amelyet az állatok mellékhatás nélkül türtek.

Betegeinknek 800-1000 µCi ^{153}Sm-EDTA-t adtunk intravénásan, és 24 óra mulva végeztük a szcintigráfiás vizsgálatot, mivel az állatkisérletek és az előzetes klinikai vizsgálatok alapján ez az idő bizonyult optimálisnak. Jól szemlélteti ezt az 1. ábrán bemutatott 24 órás profil szcintigram, amelyen az alacsony testháttérből kifejezett csucs emelkedik ki a térdtájék felett. Ebben az esetben ez a csucs a tumoros csontdestrukciónak felel meg, és az itt feldusult ^{153}Sm aktivitását reprezentálja.



1. ábra

24 órás profil szcintigram kifejezett izotópdusulást mutat a térdtájék felett

Jelen közleményünkben 30 beteg adatait állitottuk össze. A betegek diagnózis szerinti megoszlását és az izotópdusulás jelenlétét vagy hiányát az 1. táblázat szemlélteti.

1. táblázat

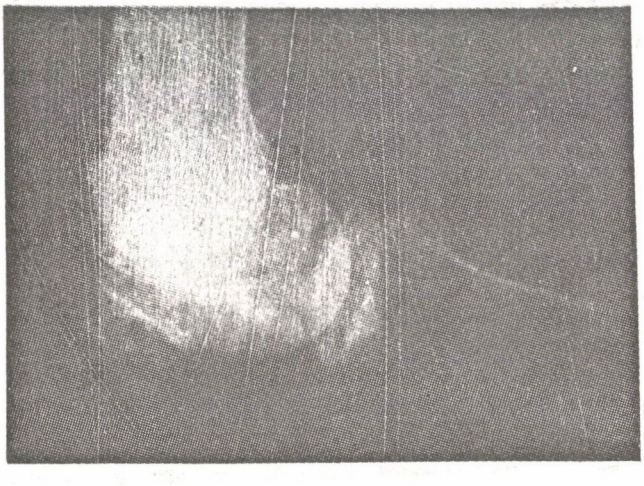
Diagnozis	pozitiv szcintigram	negativ szcintigram	összesen
Carcinoma csontmet.	12	3	15
Primaer malignus csontfolyamat	6	1	7
Osteomyelitis	5	-	5
Arthrosis	-	2	2
Csontcysta	-	1	1
	23	7	30

A táblázat adataiból két lényeges következtetést vonhatunk le:

1. a radioaktiv szamárium nemcsak a tumoros, hanem a gyulladásos elváltozásokban is halmozódik; tehát a pozitiv szcintigram nem pathognomicus;

2. a cysták és arthrosisos elváltozások nem mutatnak dusulást, feltehetően a hiányzó osteoblast tevékenység miatt.

A 2. ábra osteosarcoma femoris röntgenképét mutatja. A folyamat a distalis condylusra lokalizálódik, és az izületet contacturában tartja. A 3. ábrán a szcintigramot látjuk, kifejezett dusulással az elváltozás centrumában.

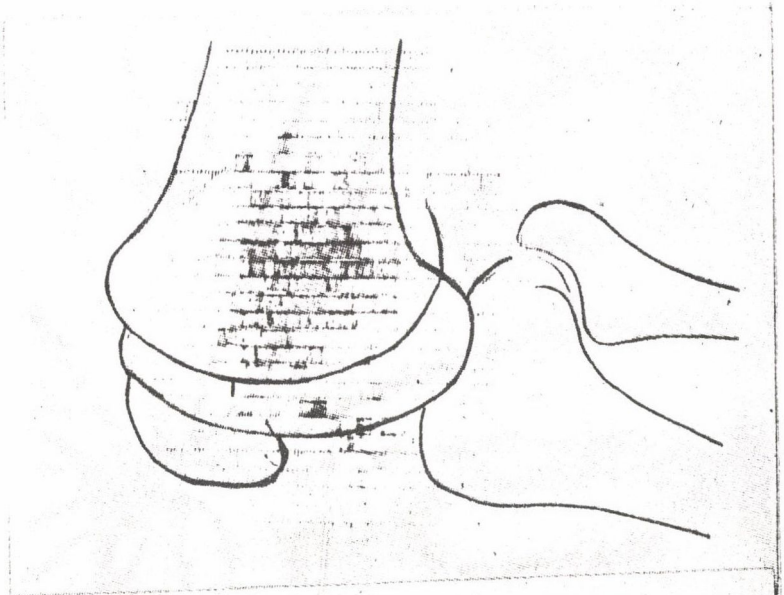


2. ábra

Osteosarcoma femoris röntgenképe

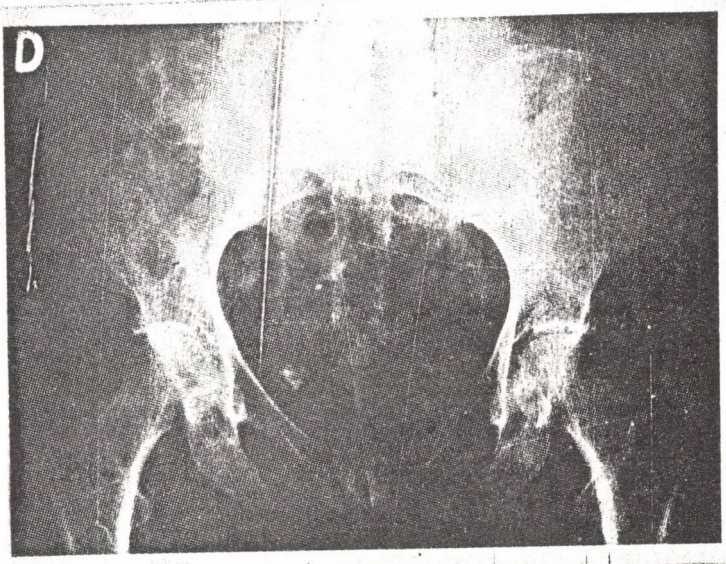
A 4. ábra emlőrákos beteg medencéjéről készült röntgenfelvétel, melyen a jobb csipőlapát kiterjedt destrukciója látható. A szcintigramon /5. ábra/ nemcsak a beteg oldalon van izotópfelvétel, hanem kisebb mértékben az ellenoldalon is. Utóbbiról feltételezzük, hogy már metasztázisra utal, amely a röntgenképen még biztosan nem mutatható ki.

Végül a 6. ábrán a jobb felkar osteomyelitises folyamatát látjuk intenziv antibioticus kezelés után.



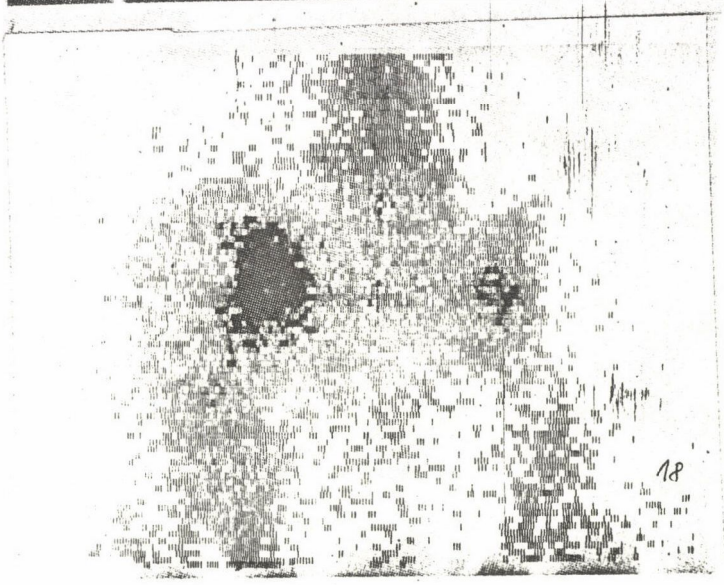
3. ábra

A szcintigramon izotópdusulás az elváltozás centrumában



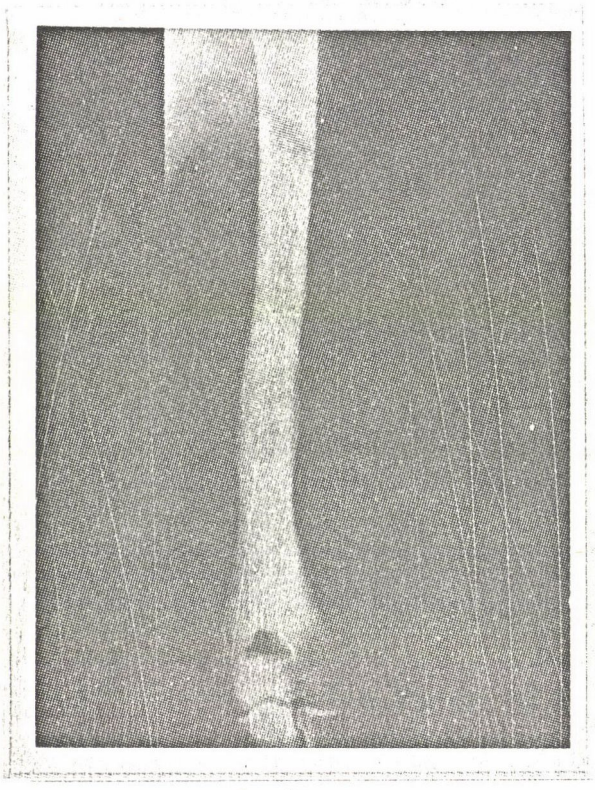
4. ábra

Emlőrák metasztázisa a jobb os ileiben



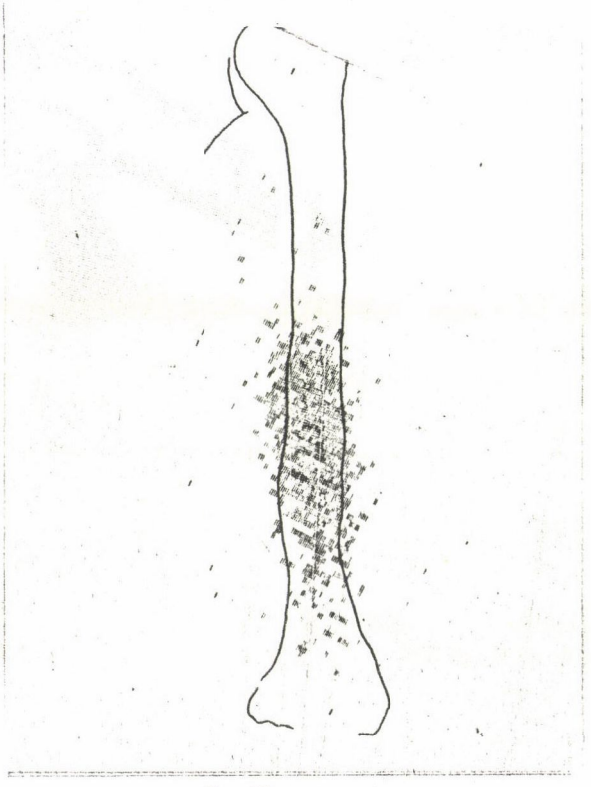
5. ábra

A szcintigram nemcsak a röntgen-elváltozásnak megfelelően mutat dusulást, hanem az ellenoldalon is



6. ábra

Jobb felkar osteomyelitisét ábrázoló röntgenkép



7. ábra

A jobb felkarról készült pozitiv szcintigram

A szcintigram /7. ábra/ izotópdusulást mutat, amely a folyamat nem tökéletes gyógyulására utal. Ez utóbbi véleményünket az utólag elvégzett mütét igazolta.

Összefoglalóan az a véleményünk, hogy a ^{153}Sm-EDTA eredményesen használható a csont izotópos vizsgálatában. Előnye, hogy előállitása egyszerü és olcsó, toxikus mellékhatása nincs, és a ^{153}Sm γ-sugárzása jól detektálható /70-100 keV/. További lényeges előnye, hogy a test sugárterhelése kb. 40 %-kal kisebb, mint a leggyakrabban használt ^{85}Sr esetében. Hátrányos tulajdonság, hogy a ^{153}Sm β-sugárzása diagnosztikai szempontból felesleges terhelést jelent, továbbá viszonylag rövid felezésü ideje /47 óra/ folytán a reaktortól távol eső munkahelyekre történő szállitása a rövid felezési idejü izotópoknál ismert nehézségekkel jár.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/465-472

RADIOAKTIV FÉMKOMPLEXEK RETENCIÓJÁNAK VIZSGÁLATA PATKÁNYOKON

Máté L.*, Varga L.*, Farkas Gy.*, Pál I.**, Fehér I.***
*Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest
**MTA Izotóp Intézete, Budapest
***MTA Központi Fizikai Kutató Intézet, Budapest

^{58}Co-DTPA és ^{51}Cr-EDTA szervekben történő eloszlását és retencióját vizsgálták. Az első vegyületnél az intracelluláris térbe jutott komplex a sejtben metabolizálódik, a fémion deponálódik a szervekben. A krómkomplexnél a fémion kis hányada jut ki a komplexből. Az elnyelt dózis a kobaltvegyületnél /20 µCi/ 7,2 mrad, a krómvegyületnél /300 µCi/ 0,21 mrad.

Изучение в опытах на крысах задержки радиоактивных металлокомплексов
Матэ, Л., Варга, Л., Фаркаш, Дь., Пал, И., Фехер, И.
Были изучены распределение и задержка в органах ^{58}Co-ДТПА и ^{51}Cr-ЭДТА. При кобальта комплекс подвергается метаболизму в ктетках, а ион металла депонируется в органах. У хрома из комплекса освобождается очень низкая пропорция иона металла. Полученная доза при ^{58}Co-ДТПА /30 мккюри/ составляет 7,2 мрад, при ^{51}Cr-ЭДТА /300 мккюри/ 0,21 мрад.

Investigations on the Retention of Radioactive Metal Complexes in Rats
Máté, L., Varga, L., Farkas, Gy., Pál, I., Fehér, I.
Distribution and retention of ^{58}Co-DTPA and ^{51}Co-EDTA in organs. Cobalt complex is metabolized in cells, the metal ions are deposited in the organs. With the chromate complex only a small proportion of metal ion leaves the compound. Irradiation dose from 30 µCi ^{58}Co-DTPA amounts to 7,2 mrad, that from ^{51}Cr-DTPA /300 µCi/ to 0,21 mrad.

BEVEZETÉS

A vese különféle funkcióinak vizsgálatára az utóbbi évtizedekben többféle radioizótóppal jelzett vegyületet használtak fel. A glomerulus filtráció mérésére olyan jelzett vegyületek alkalmasak, amelyek csak glomerulus filtrációval ürülnek, a tubulusokból nem reabszorbeálódnak, nem metabolizálódnak, nem kötődnek és deponálódnak egyes szervekben. Myers és Diener[1], Winter[2], Stacy és Thorburn[3], valamint Pál[4] vizsgálatai bizonyitották, hogy az EDTA és DTPA fémkomplexei glomerulus filtrációval ürülnek, a tubulusokból nem reabszorbeálódnak, tehát clearence-vizsgálatra alkalmasak.

Ismert tény azonban, hogy néhány fémkomplex, amely "in vitro" nagy stabilitással rendelkezik, "in vivo" kisérletekben hosszabb ideig mérhető mennyiségben marad vissza a szervezetben.

Kisérleteinkben a glomerulus filtráció mérésére alkalmas ^{58}Co-DTPA és ^{51}Cr-EDTA szervekben történő eloszlását, valamint retencióját vizsgáltuk

intravénás bevitel után, annak eldöntésére, hogy a fémkomplex vagy a komplex kötésből kiszabadult fémion deponálódik-e valamelyik szervben, és mekkora az egésztest dózisterhelése.

ANYAGOK ÉS MÓDSZEREK

Radioizotópok

Kisérleteinkben nagy komplexképző felesleggel rendelkező izotóniás ^{58}Co-EDTA és ^{51}Cr-EDTA oldatokat, valamint hordozómentes $^{58}CoCl_2$ és $^{51}CrCl_3$ izotoniás oldatait használtuk. A felhasznált vegyületek radiokémiai tisztasága 99% felett volt, amelyet 512 csatornás analizátorhoz kapcsolt Ge/Li/ félvezető detektorral ellenőriztünk. A Co-vegyületeknél ^{60}Co- és ^{54}Mn-szennyezést találtunk.

Állatok, kezelés, mérés

R/AxLE F_1 hibrid 8-10 hetes, 180-200 g sulyu him patkányoknak farokvénába adtuk a kb. 3 µCi aktivitásu radioizotóp-készitményeket 1 ml izotóniás oldatban. Bevitel után 5 perc mulva egésztestszámlálón határoztuk meg a bevitt aktivitást, majd a további időpontokban a visszamaradt mennyiséget. Az állatokat egyenként anyagcsereketrecekben tartottuk a kisérletek során, az esetleges vizelettel történő külső szennyezés elkerülése végett. Egy-egy csoportba 18-30 állat tartozott. A szervekben történő eloszlás és retenció meghatározására 5 és 30 perc, 1 és 4 óra mulva, valamint az 1., 3., 6., 10., 23. napon a csoportból 2-2 állatot, továbbá a 37. napon a maradék állatokat dekapitálással leöltük. A leölt állatokból kivett szerveket szürőpapirral leitattuk, majd aktivitásukat sulymérés után üreges NaI/Tl/ kristályban megmértük. Az aktivitásméréshez az egész májat, tüdőt, vékonybelet, lépet, mindkét vesét és heréket, egy pár femurt, a vér és a combizom egy részét használtuk. A teljes vérre, csontvázra és izomzatra vonatkozó aktivitást számitással határoztuk meg[5], az alábbi képletek segitségével:

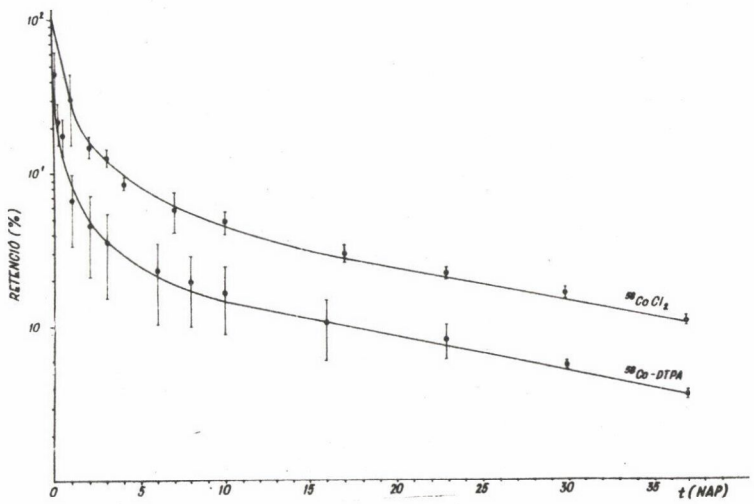
teljes vér ml = egésztestsuly $g^{0,9}$ x 0,096
csontváz g = egésztestsuly x 0,11
izomzat g = egésztestsuly x 0,4

A fentiekből számitottuk a dusulás mértékét, valamint a szervben lévő aktivitást, melyet a bevitt mennyiség %-ában fejeztünk ki. Annak eldöntésére, hogy a maradék aktivitás nem származik-e a vizelettel történt külső szennyezésből, néhány állat bőrét lenyuztuk, és egésztestszámlálón megmértük.

EREDMÉNYEK

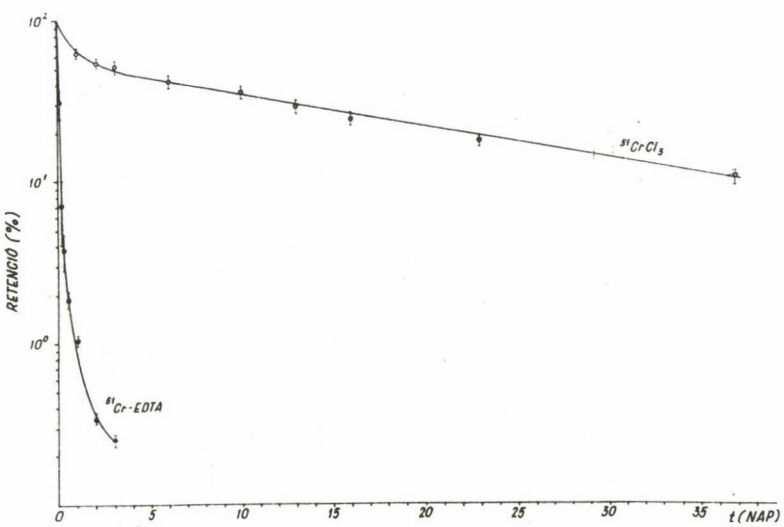
Egésztestretenció

Az egésztestmérésekből kapott retenciós értékeket az 1. 2. és 3. ábra mutatja. Mint az 1. ábrán látható, az ^{58}Co-DTPA komplex ürülésében három szakaszt különböztetünk meg. Első szakaszban, 24 órán belül a bevitt mennyiség több, mint 90 %-a ürül ki a vizelettel az eredeti kelátformában. 24 óra után a kiürülés lelassul, majd 4-5 nap után még lassubb szakaszba megy át. Az ^{58}Co-DTPA és az $^{58}CoCl_2$ retenciós görbéinek menetét összehasonlitva megállapitható, hogy a harmadik szakaszban az ürülés azonos lefutást mutat.



1. ábra

Teljesen eltérő rentenciós görbéket kapunk az ^{51}Cr-EDTA és $^{51}CrCl_3$ esetén /2. ábra/. Mig a komplex 99 %-a 24 órán belül kiürül, az ionos ^{51}Cr tartósan visszamarad, és csak lassan ürül ki. Az ^{51}Cr-EDTA kiürülése olyan gyors, hogy a harmadik nap után már nem mérhető az állatokban. Az ^{58}Co-DTPA és ^{51}Cr-EDTA korai /0-3 nap/ ürülésében mutatkozó eltérést a 3. ábra szemlélteti.



2. ábra

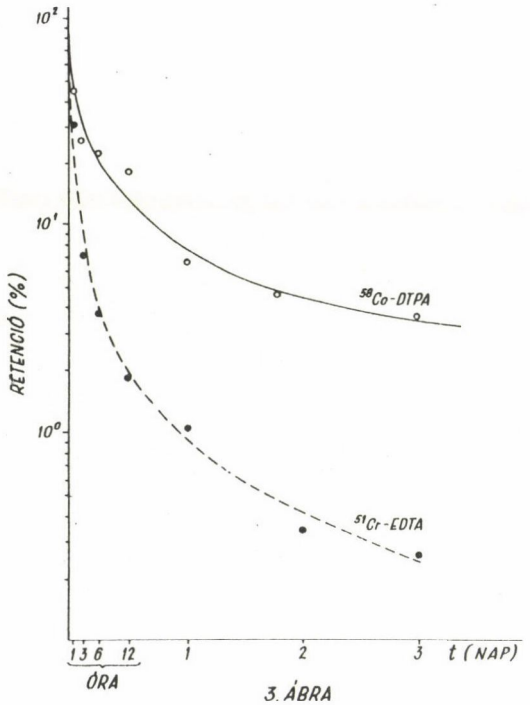
A görbék lefutásából empirikusan meghatározhatók a retencióra vonatkozó exponenciális függvények.

Az ^{58}Co-DTPA-ra vonatkozóan:

$$R/t/\ \% = 58{,}5 \exp.[-0{,}693t/3{,}002] + 5{,}3 \exp.[-0{,}693\ t/41{,}6] + 2{,}5 \exp.[-0{,}693\ t/317],$$

ahol

az effektiv felezési idő órákban szerepel.



3. ÁBRA

3. ábra

Az ^{51}Cr-EDTA-nál a retenciós függvény tulajdonképpen szintén négy tagból áll. A nagyon rövid felezési idejü komponenst a fentiek miatt, a leghosszabb felezési idejü komponenst az igen kis aktivitások bizonytalan mérése miatt nem lehetett számitani. Az igy felállitható két tagból álló exponenciális függvény:

$$R/t/\ \% = 65{,}3\left[\exp -0{,}693.t/0{,}93\right] + 3{,}2\ \exp\left[-0{,}693.t/9{,}0\right]$$

Szeveloszlás, retenció

Az egyes szervekben és szövetekben visszamaradt ^{58}Co-DTPA mennyiségét az 1. táblázat tartalmazza. 24 óra után csupán a máj és a vese tartalmaz a beadott mennyiség 1%-ánál nagyobb mennyiséget.

Az egyes szervek sugárterhelésének megitélésére, valamint az indikátorizotóp depondálódásának és migrálásának kimutatása szempontjából célszerü számitani az u.n. dusulási faktort /D_f/:

$$D_f = \frac{A_{sz}\ /S_{et} - S_{sz}/}{S_{sz}\ /A_{et} - A_{sz}}$$

ahol

A_{sz} = a szerv aktivitása;

A_{et} = az egésztest aktivitása;

S_{sz} = a szerv sulya;

S_{et} = az egésztest sulya.

Néhány szerv %-os aktivitását, valamint dusulási faktorát a 4. és 5. ábra szemlélteti. Beadás után 4 óra mulva a máj aktivitása nagyobb, mint a veséé, a vese dusulási faktora viszont kezdettől nagyobb értéket mutat.

Dózisterhelés

Az abszorbeált energiadózist a Medical Internal Radiation Dose /MIRD/ Committee által javasolt módszerrel határoztuk meg[10]. Az egész testben abszorbeált dózis számitásánál a következő feltételezéseket tettük:

1. táblázat

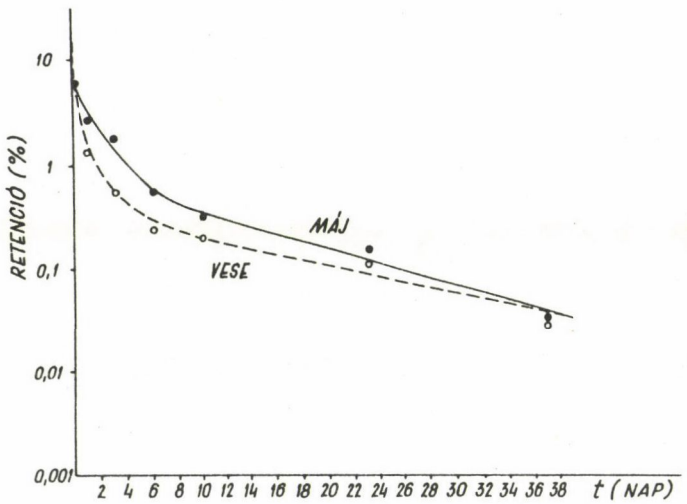
Patkányszervek ^{58}Co-DTPA-tartalma az i.v. bevitt mennyiség százalékában

Szerv	Idő									
	5 min	30 min	1 h	4 h	1 d	3 d	6 d	10 d	23 d	37 d
1. Vér *	11,36	6,20	3,50	1,83	0,37	0,07	0,03	0,03	0,01	
2. Máj	6,62	6,56	5,35	5,92	2,68	1,73	0,55	0,30	0,17	0,031
3. Vese	11,41	17,86	7,58	4,01	1,06	0,73	0,24	0,20	0,11	0,028
4. Lép	0,14	0,09	0,05	0,04	0,02	0,01	0,008	0,003	0,004	
5. Herék	0,48	0,37	0,23	0,08	0,03	0,01	0,004	0,003	0,002	
6. Tüdő	1,42	0,87	0,55	0,21	0,09	0,04	0,02	0,006	0,009	
7. Vékonybélfal	1,58	1,11	0,78	0,61	0,99	0,04	0,015	0,009	0,005	
8. Izom **	10,80	8,12	4,36	1,42	0,80	0,59	0,24	0,16	0,12	
9. Csont ***	5,12	3,85	3,04	1,28	0,60	0,39	-	0,21	0,11	

*A vér összaktivitása: 1 g aktivitása alapján: a testsuly $g^{0,9}$x0,096

**Az izom összaktivitása: 1 g aktivitása alapján: a testsuly x0,4

***A csontváz összaktivitása: 1 g csontszövet alapján: a testsuly x0,11 /Kovács A./



4. ábra

a dózisszámitás alapja a Snyder és munkatársai által kidolgozott standard ember modellje;
az állatkisérletekben kapott egésztest-retenciós görbe megegyezik a humán retenciós görbével;
az egész testben a radioaktiv anyag homogén eloszlásu;
a nem áthatoló sugárzás teljes mértékben abszorbeálódik a testben;
az általunk nem mért nagyon rövid felezési idejü komponens abszorbeált dózisa nincs benne az általunk számolt értékben;

a retenciós görbét leiró kifejezés az utolsó mérési időn tul is érvényes.

Az abszorbeált közepes energia definiciója:

$$\bar{D}_{\infty} \; /v \leftrightarrow v/ \; = \frac{A_v}{m_v} \Sigma \Delta_i \varphi_i \; \text{rad}$$

ahol

$\bar{D}_{\infty} \; /v \leftrightarrow v/$ az egész testben elnyelt dózis;

A_v a testben akkumulálódott aktivitás µCi/h-ban;

m_v a test tömege g-ban;

Δ_i egyensulyi dóziskonstans az i-k sugárzásra;

φ_i az i-k sugárzás abszorpciós faktora.

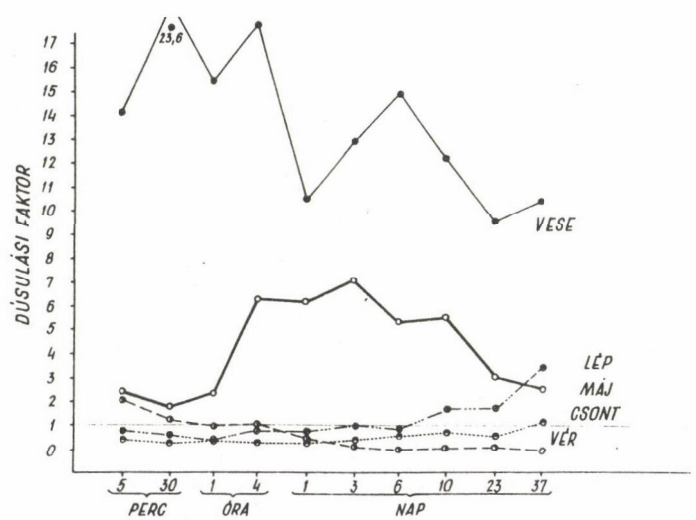
100 µCi ^{58}Co-DTPA beadása esetén, a megfelelő értékeket behelyettesitve

$$\bar{D}_{\infty} \; /v \leftrightarrow v/ \; = 23{,}9 \text{ mrad}$$

egésztest-dózisterhelést kapunk.

100 µCi ^{51}Cr-EDTA beadása esetén

$$\bar{D}_{\infty} \; /v \leftrightarrow v/ \; = 0{,}07 \text{ mrad}.$$



5. ábra

MEGBESZÉLÉS

A clearence-vizsgálatokra alkalmas jelzett vegyületekkel szemben támasztott követelményeket a bevezetőben felvázoltuk. Ezek mérlegelésével került sor az ^{58}Co-DTPA és az ^{51}Cr-EDTA felhasználására.

Részletesebb vizsgálatok azonban kideritették, hogy az emlitett komplexek a fenti követelményeknek nem tesznek szigoruan eleget. Sliz és munkatársai[6] kisérleti és klinikai tapasztalatok alapján arra a következtetésre jutottak, hogy az EDTA komplexek nem csak glomeruláris filtrációval ürülnek. Foreman és munkatársai[7], valamint Havlicek és munkatársai[8] ^{14}C-jelzett EDTA metabolizmusát vizsgálva patkányokon, a bevitt dózis 0,1-1,0 %-át találta a kilégzett levegőben $^{14}CO_2$ formában. Ugyancsak Foreman[9] vizsgálatai valószinüsitik, hogy a DTPA komplex, áthatolva a sejtmembránon, bejut az intracelluláris térbe.

Az ^{58}Co-DTPA retenciójára kapott görbe lefutásából, valamint a számitott konstansok értékéből arra lehet következtetni, hogy a harmadik szakaszban történő lassu ürülés /$T_{1/2}$=317 óra/ tartósan deponálódott komponensből származik. A változatlan komplex ilyen tartós deponálódása nem képzelhető el. A komplex megbomlása, a fémion kiszabadulása a komplexből bekövetkezhet valamilyen endogén komplexképző hatására, vagy maga a komplexképző metabolizálódik. Lehetséges, hogy már az ily módon kiszabadult fémion jut be az intracelluláris térbe, vagy pedig a bejutott komplex metabolizálódik a sejtben. Valószinübbnek látszik a DTPA metabolizálódása, melyet Foreman[7] és Havlicek[8] vizsgálatai alátámasztanak.

További igazolást jelent az $^{58}CoCl_2$ retenciójára kapott görbe analizisének eredménye. A harmadik szakaszban az $^{58}CoCl_2$ ugyanolyan ürülést mutat, a felezési idő kevés eltéréssel azonos /370 óra/. Ez kétségtelenül alátámasztja azon feltevésünket, hogy a harmadik szakaszban a szervekben, szövetekben deponálódott ionos Co ürül.

Az egyes szervekben és szövetekben mért aktivitásból, de leginkább a dusulási faktor értékének változásából is, arra lehet következtetni, hogy komplexből kiszabadult fémion deponálódott az egyes szervekben, szövetekben. A dusulási faktorok kezdetben gyors csökkenést mutatnak - a máj és a vese kivételével, - majd lényegében állandó szinten maradnak. A máj dusulási faktorának kezdeti csökkenése után növekedést tapasztaltunk, ami a májban történő felhalmozódásra utal. A lépben és a csontban a kezdeti csökkenés után folyamatos növekedés lép fel, ami az ebbe az irányba történő migrálásra, felhalmozódásra és tartós beépülésre mutat. Az egyes szerveknél és szöveteknél tapasztalható kezdeti gyors csökkenés a komplexnek a keringésből és az extracelluláris térből történő kiürülésére utal.

A fentiek alapján az alábbi négy alapvető kompartment tételezhető fel:

1. Keringő vér,
2. extracelluláris tér,
3. fehérjéhez vagy más anyaghoz kötött komplex,
4. komplexekből kiszabadult, deponálódott ionos ^{58}Co.

Az ^{51}Cr-EDTA ürülése eltérő képet mutat. A nagy hányadhoz tartozó kis felezési idő arra utal, hogy a keringésből az extracelluláris térbe jut csupán a komplex, a fémion nagyon kis hányada szabadul ki a komplexből, és kevés lehet a fehérjéhez vagy más anyaghoz kötött komplex is.

Az egész testre vonatkozó dózisszámitások azt mutatják, hogy az ^{58}Co-EDTA szokásos adagjánál /30 µCi/ 7,2 mrad, mig az ^{51}Cr-EDTA /300 µCi/-nál 0,21 mrad az elnyelt dózis, mely alatta marad a szokásos röntgenvizsgálatoknál kapott értékeknek.

IRODALOM

1. *Myers, W.G., Diener, G.F.*, J.Nucl.Med. 1 /1960/ 124
2. *Winter, C.C., Myers, W.G.*, J.Nucl.Med. 3 /1962/ 273
3. *Stacy, B.D., Thorburn, G.D.*, Science N.Y. 152 /1966/ 1076
4. *Pál, I., Gács, R.G., Klityina, R.G., Farkas, G., Törkő, I.*, Beil.Atompraxis 11 /1966/
5. *Kovács A.*, A kisérleti orvostudomány vizsgáló módszerei. Akadémiai Kiadó, Budapest 1954.I.k. 104-122.o.
6. *Slitz, K., Oppelt, A., Hruby, L.*,"Dynamic studies with radioiosotopes in medicine" IAEA Vienna, 1971. 347-357.o.
7. *Foreman, H., Vier, M., Magee, M.*, J.Biol.Chem. 203 /1953/1045
8. *Havlicek, F., Bohne, F., Zorn, H.*, Strahlentherapie 136 /1968/ 604
9. *Foreman, H.*, "Metal Binding in Medicine", Philadelphia, J.B. Lippincott, 1960, 82. és 160.o.
10. *Snyder, W.S.*, et al. MIRD Pamphlet no.5., J.Nucl.Med. 10 /1969/ 5.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/473-475

RADIOHIGANY-VEGYÜLETEK SUGÁRTERHELÉSÉNEK CSÖKKENTÉSE KELÁTKÉPZÉSSEL

Szabó I.
Fővárosi Onkoradiológiai Intézet, Weil Emil Területi Vezető Kórház, Budapest

A ^{203}Hg-EDTA megbizhatóbb a ^{203}Hg-neohydrinnél tumorok szcintigráfiás kimutatására. A vesék nagyobb sugárterhelését EDTACAL feleslegben történő adásával a ^{203}Hg-neohydrin sugárterhelésének szintjére csökkentették.

Применение комплексообразующих соединений для снижения лучевой нагрузки при использовании в диагностических целях радиоизотопных препаратов ртути
Сабо, И.
Применение ^{203}Hg-ЭДТА, дополненное введением ЭДТАКАЛ более надежно ^{203}Hg-неогидрина в сцинтиграфии опухолей, и лучевая нагрузка от него не превышает лучевой дозы ^{203}Hg-неогидрина.

Lowering of the Radioactive Burden of Radiomercury Compounds by Chelate Formation
Szabó, I.
^{203}Hg-EDTA is more reliable in scintigraphy of tumors than ^{203}Hg-Neohydrin. The higher burden to kidneys is lowered to the value of the burden from ^{203}Hg-Neohydrin by excess introduction of EDTACAL.

Radioizotópos vizsgálatoknál fontos követelmény, hogy a módszer egyrészt megbizható eredményt adjon, másrészt a vizsgált személy minél kisebb sugárterhelésben részesüljön. E két szempont néha nehezen egyeztethető össze, s ezért például tumordiagnosztikai vizsgálatoknál előfordulhat, hogy kénytelenek vagyunk olyan módszert, illetve radioizotópot választani, amely a betegre nézve viszonylag nagyobb sugárterhelést jelent.

Különösen jellemző ez a kompromisszum a radiohigany-vegyületek tumorszcintigráfiás alkalmazására.

A Fővárosi Onkoradiológiai Intézetben 1966-ban kezdtük meg tumordiagnosztikai vizsgálatainkat a 2,7 napos felezési idejü ^{197}Hg vegyületeivel. Azt állapitottuk meg, hogy bár a kritikus szerv /vesék/ sugárterhelése kicsi, a radionuklid rövid fizikai felezési ideje miatt, relative nagy beadási aktivitás esetén is csak a gyorsan növekvő, sugárérzékeny daganatok mutathatók ki megbizhatóan, ezért 1968-ban áttértünk a 47 napos felezési idejü ^{203}Hg-vegyületek alkalmazására.

A hosszu felezési idejü radiohigany-vegyületekkel a kevésbé sugárérzékeny, differenciált sejtes tumorok is sokkal megbizhatóbban mutathatók ki,

azonban alkalmazásuk a tumordiagnosztikához szükséges aktivitások esetében a vesekéregre egy nagyságrenddel nagyobb sugárdózist jelentenek. Természetesen ezek a dózisok sem okoznak sem funkcionális, sem morfológiai elváltozásokat, azonban csökkentésük feltétlenül indokolt.

A ^{203}Hg-neohydrin + amelyet sok esetben alkalmazunk is, minden külső beavatkozás nélkül is gyorsan eltávozik a szervezetből. A vegyület felhasználhatóságát lerontja az a körülmény, hogy a szcintigráfia elvégezhetőségének időpontja meglehetősen tág határok között változik. Ha a megfelő idő előtt végezzük el a vizsgálatot, a nagy vérháttér miatt a kép értékelhetetlen, ha viszont néhány órával az optimális időpont után szcintigrafálunk, téves negativ leletet kapunk.

Általánosságban tumorok szcintigráfiás kimutatására legmegbizhatóbbnak a $^{203}HgCl_2$ és ennek EDTA-val képzett komplexe bizonyult. Alkalmazásukkal a szcintigráfia időben igen tág határok között végezhető el; általában a beadás után 2-7 napig tetszés szerinti időben mutatható ki a tumor.

Ezeknek a vegyületeknek azonban az a nagy hátránya, hogy a vesekéregállományra viszonylag nagy sugárterhelést jelentenek /500 µCi ^{203}Hg-neohydrin= 285 rad; 300 µCi $^{203}HgCl_2$ = 420 rad/.

A vizsgálatainkhoz szükséges minimális aktivitást a rendelkezésre álló készülék érzékenysége határozza meg, tehát a sugárterhelés csökkentése céljából csak a dekorporációs eljárások jöhetnek számitásba.

Dekorporációs vizsgálatainkat engedélyezett méregtelenitő gyógyszerekkel végeztük. Ellenőrzési módszerként a beteg által üritett és gyüjtött vizelet aktivitásának mérését választottuk. Magát a mérést automatikus energiaszelektiv számlálóval, üreges kristályban végeztük.

Ezzel a módszerrel a ténylegesnél kisebb üritési értékeket kapunk, mivel a széklettel is távozik radiohigany, összehasonlitó vizsgálatként azonban nagyon jól megfelel.

Vizsgálatainkat a klasszikus Hg-méregtelenitő gyógyszerekkel /Na-tioszulfát, K-jodid, BAL/ és kombinációikkal kezdtük el, a klinikai toxikológiában szokásos dózisokkal.

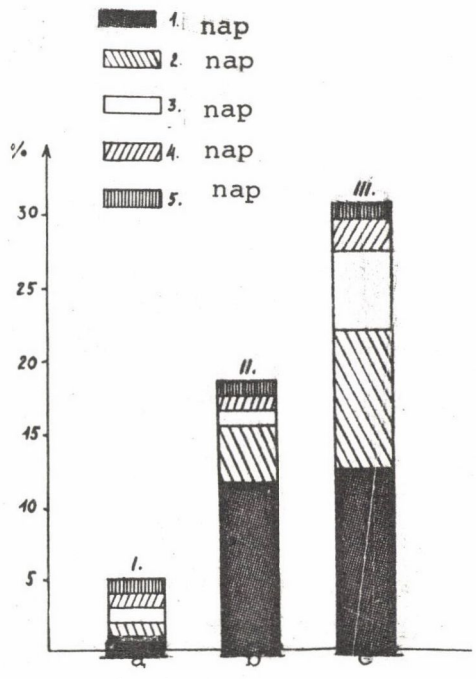
Megállapitottuk, hogy a vizelettel kiürült higany aktivitása nem különbözött a tisztán $^{203}HgCl_2$ alkalmazásával kapott értékektől. Szám szerint ez az érték napi 1% körül ingadozott. /1. ábra, a./

Megállapitottuk továbbá, hogy a különféle tipusu vizelethajtók alkalmazása - a nagy mértékü vizeletürités ellenére, - nem fokozza a higanykiürülést.

Ezek után a radiohiganyt nem klorid formában, hanem EDTA-komplexben /kelátban/ adtuk be intravénásan ugy, hogy a csehszlovák "Spofa" gyár EDTACAL

nevü 10 ml-es, 2 g kalcium-dinátrium-etilendiamin-tetraecetsavat tartalmazó készitményéhez adtuk hozzá a 0,2-0,4 mg tömegü, 300 µCi aktivitásu $^{203}HgCl_2$-t. Igy tulajdonképpen ^{203}Hg-EDTA-t adtunk be, viszonylag nagy Ca-EDTA feleslegel. Erre azért van szükség, mivel a kémiai tömeghatás törvénye miatt a detoxikáló anyagnak mindig feleslegben kell lennie.

A további szükséges felesleget ugy biztositottuk, hogy a Hg-beadás időpontjától számitva 4 napon át 24 óránként további 10 ml EDTACAL-t adtunk be intravénásan.



1. ábra

Eredményként az első 24 óra alatt 12 %-os higanyürülést mértünk, és a beadástól számitott 5 nap alatt a beadott aktivitás 19 %-a ürült ki /1. ábra, b/. Ezzel kb. arányosan a vesekéreg sugárterhelése már 345 radra csökkent.

Kézenfekvőnek látszott, hogy nagyobb EDTA-felesleg biztositása további higanykiürülést eredményezhet. Ezekután ugy jártunk el, hogy a Hg-EDTA beadása után 2, 6, 24, 72 órával még 10-10 ml EDTACAL-t adtunk be intravénásan.

Az eredmény: 5 nap alatt a vizelettel kiürült radiohigany aktivitása 31 % volt a beadott aktivitáshoz viszonyitva /1. ábra, c/. Az eljárás sugárterhelése a vesekéregre nézve kb. 290 radra csökkent, ami közel megfelel a ^{203}Hg-neohydrin 285 rados sugárterhelésének.

Az EDTACAL ilyen mértékü adagolása a betegnél mellékhatásokat nem okozott, s a szcintigráfia minden esetben sikeres volt.

Összefoglalóan, megállapitottuk, hogy ^{203}Hg-EDTA a megfelelő kiegészitésü EDTACAL dozirozással jó tumordiagnosztikai lehetőséget biztosit, és a vesekéreg sugárterhelése sem haladja meg lényegesen az általánosan alkalmazott ^{203}Hg-neohydrin sugárdózisát.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/476-481

RADIOHIGANY-VEGYÜLETEK A ROSSZINDULATU DAGANATOK DIAGNOSZTIKÁJÁBAN

Vándor F., Szabó I.
Fővárosi Onkoradiológiai Intézet, Weil Emil Fővárosi Területi Vezető Kórház, Budapest

A $^{197}HgCl_2$ rejtett eredetü nyaki tumorok, száj-gége tumorok metastasisainak, a ^{203}Hg-neohydrin az agytumorok diagnosztikájára, tüdődaganatok és hilusi metastasisaik kutatására ajánlható.

Применение радиоизотопных препаратов ртути в диагностике злокачественных опухолей
Вандор, Ф., Сабо, И.
^{197}Hg рекомендуется для диагностики метастазов скрытых опухолей, гортани и полости рта; а ^{203}Hg -неогидрин для диагностики опухолей мозга, легких и их прикорневых метастазов.

Radiomercury Compounds in the Diagnostics of Malignant Tumors
Vándor, F., Szabó, I.
$^{197}HgCl_2$ is recommended for the detection of hidden origine neck tumors, metastases of oral and laryngeal tumors; ^{203}Hg-Neohydrin could be used for the diagnostics of brain tumors, lung tumors and their metastases.

A malignus tumorok izotópdiagnosztikájában a tumor radionuklid-felvételi hiányán alapuló "negativ" scanning és magában a tumorban halmozást mutató "pozitiv" scanning egyaránt szerepel.

A negativ scanning részben a keringés tumorral kapcsolatos megváltozásán, részben tárolási különbségeken alapszik. Az előzőre példa az izotópos lymphographiával elérhető telődési hiány vagy a tüdőelváltozások perfuziós tüdőszcintigráfiával történő vizsgálata. A tárolási különbségeken alapszik a máj radiokolloid-vizsgálata, vagy a pajzsmirigy izotópscanningje.

A pozitiv scanning bizonyitó ereje kétségtelenül nagyobb, a gyakorlatban azonban kevés olyan eljárás ismeretes, mely a rosszindulatu daganat közvetlen scanninges detektálására alkalmas.

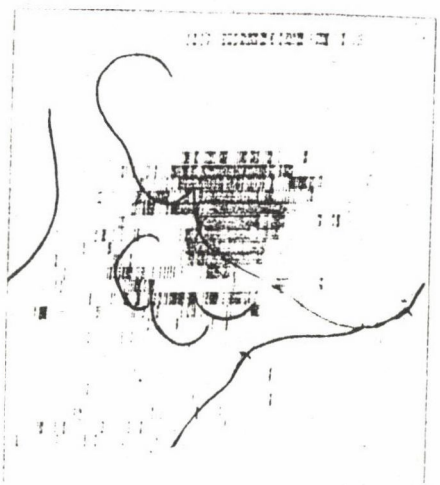
Saját vizsgálatainkban a különféle radioaktiv higanyvegyületek rosszindulatu daganathoz való kötődését, a detektálási lehetőség körülményeit, az izotóp eloszlását és ürülését tanulmányoztuk.

A radiohigannyal elérhető pozitiv tumordetektálás az agytumorok diag-

nosztikájában régen ismert, és jelenleg is használatos. Egyéb elhelyezkédésü tumorok radiohigannyal történő detektálási lehetőségére Sodee már 1964-ben felhivta a figyelmet.

A ^{197}Hg-neohydrinnel végzett vizsgálatok /Sodee/ugyanugy, mint a $^{197}HgCl_2$ alkalmazása /Rymer, Isacc, Pokorna/ különböző tumorlokalizációban a nagy vérháttér miatt a hibás pozitiv lelet veszélyével jár. A vérháttér csökkenése viszont egybeesik a rövid felezési izotóp lebomlásával, mely körülmény hibás negativ leletet eredményezhet. A ^{197}Hg-neohydrin alkalmazásakor a diuretikumhoz kötött izotóp 24 óra alatt teljesen kiürülhet.

1967-ben végzett vizsgálataink alapján megállapithattuk, hogy a $^{197}HgCl_2$ izotóp elsősorban és metastasisaiban nagymértékben és jól detektálhatóan halmozódik. Ezeknél a daganatféleségeknél a szöveti háttér a kimutatást sem 24, sem 48 óra után sem zavarja /1. ábra/.



1. ábra

A gyorsan növő garatdaganat és nyaki áttétje $^{197}HgCl_2$-vel jól ábrázolható

A differenciált, lassabban növő daganatoknál a $^{197}HgCl_2$ scanning értéke nem ilyen egyértelmü.

A tumorhoz kötődés és a szövethátter közötti különbség kisebb.

A $^{197}HgCl_2$ gyorsan növő szájüregi és garattumorok és nyaki metastasisaiknak vizsgálatára alkalmas. Egyes esetekben ismeretlen eredetü nyaki metastasisoknál az elsődleges daganat felkutatására az eljárás alkalmas lehet. Diethelm és Buchwald az eljárást mammatumornál használta.

Saját tapasztalataink alapján a $^{197}HgCl_2$ mélyen fekvő és nem gyorsan növő tumoroknál nem használható. A téves eredmények kiküszöbölésére legalább 1500 µCi izotópra lenne szükség, és a vérháttér-tumorhalmozódás közötti legkedvezőbb különbség detektálási időpontját nehéz meghatározni.

A ^{203}Hg-neohydrin /Chlormerodrin/ effektiv felezési ideje, a diureticum hatás miatt, rövid. A gyors ürités miatt a vérháttér rohamosan csökken, de ugyanakkor az izotóp tumorhoz kötődéséhez is rövid idő áll rendelkezésre. A tumordetektálás szempontjából optimális idő meghatározása bizonytalan.

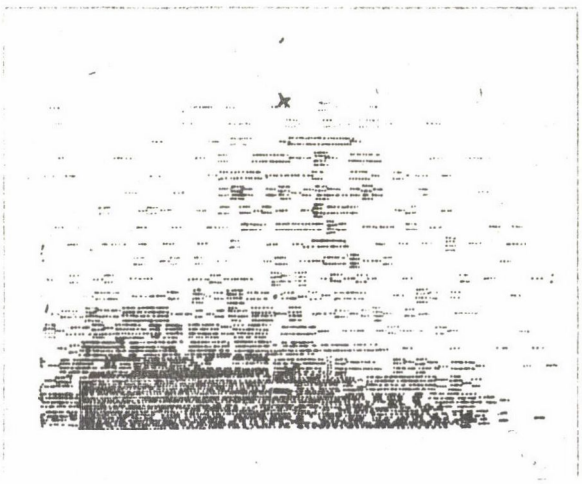
A ^{203}Hg-neohydrin agytumorok diagnosztikájában és veseszcintigráfiához általánosan elfogadott. Egyéb tumorok szcintigráfiájára nem használják, a

1. táblázat

Halmozás 500 µCi $^{197}HgCl_2$ i.v. beadását követően

	Esetszám	Halmozás	
		Kifejezett	Nincs
Lymphosarcoma, reticulum-sejtes sarcoma, anaplasticus cc.	13	13	
Planocelluláris cc, adeno-cc	9	4	5

detektálási idő bizonytalansága miatt. Saját vizsgálatainkban a ^{203}Hg-neohydrint tüdőtumorok diagnosztikájára találtuk legalkalmasabbnak. A 300 µCi nuklid beadása után készült 5 és 24 órás scanning egymással összehasonlitva határozott topografikus diagnózishoz vezet.



2. ábra

A ^{203}Hg-neohydrin kimutatja a tüdődaganatot és hörgő melletti áttétjét

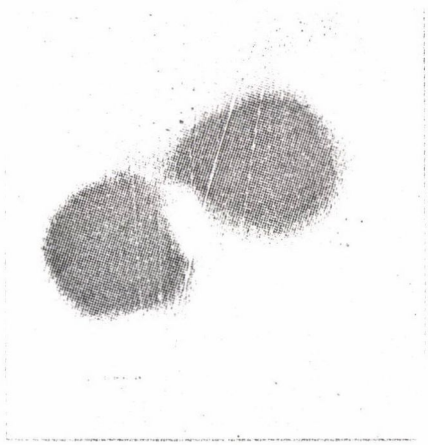
Mammadaganatok és szájüregi garatdaganatok detektálásánál a ^{203}Hg-neohydrin több téves pozitiv, illetve téves negativ eredményt adott, mint a $^{197}HgCl_2$ vagy $^{203}HgCl_2$.

A $^{203}HgCl_2$, hosszu felezési ideje /47 nap/ és veséhez kötődése miatt problematikus izotóp. Tumort ábrázoló képessége, a tumorhoz való erős kötődés és a hosszu felezési idő alatt eltünő vérháttér miatt, a legjobb.

Vizsgálatainkban a sulyt arra fektettük, hogy a $^{203}HgCl_2$ tumordiagnosztikában való felhasználhatóságának körülményeit tisztázzuk.

A ^{203}Hg 47 napos fizikai felezési ideje $HgCl_2$ esetében nem befolyásolható. A biológiai felezési idő egyszerü $HgCl_2$-nél gyakorlatilag nem változik, mert a szervezetbe bevitt $HgCl_2$ csak igen kis mennyiségben ürül. A biológiai felezési időt csak ugy lehet rövidíteni, ha a veseszövethez való kötődést megakadályozzuk. EDTA-Cal komplex képzéssel tudtuk ezt a célt elérni, és ennek eredményéről Szabó külön számol be.

A $^{203}HgCl_2$ tumorban való halmozódását mütéttel eltávolitott emlődaganatokban vizsgáltuk. A kivett daganat autoradiográfiás kép igen erős radiohigany-halmozást mutat.



3. ábra

Emlődaganat $^{203}HgCl_2$ makroautoradiográfiája

A $^{203}HgCl_2$ és a ^{203}Hg-neohydrin tumorhoz kötődését a tumorszövet és testháttér radioaktivitásának hányadosa és az eltelt idő közötti összefüggésben lehet meghatározni.

Megállapitható, hogy a $^{203}HgCl_2$ + EDTA-Cal tumorhoz kötődése még egy hét elteltével is átlagban többszöröse a rövid biológiai felezésü ^{203}Hg-neohydrinének. Ez azt jelenti, hogy a vizsgálat időpontja nem kötött, a scanning több napon át ismételhető.

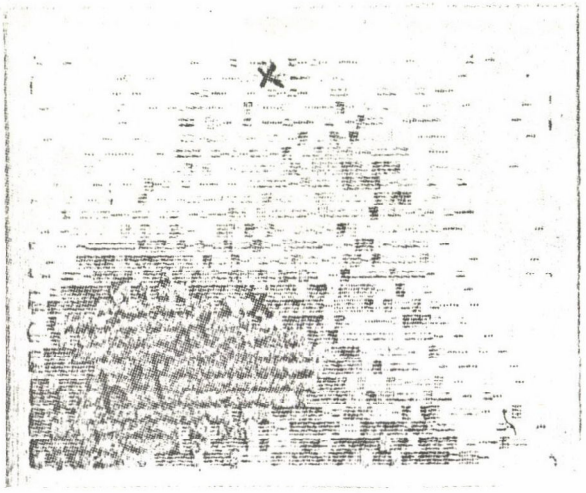
A $^{203}HgCl_2$ + EDTA a gyorsan növő, éretlensejtes és lassabban növő érettsejtes daganatokban egyaránt jól kötődik, ezért a fej daganatainál és nyaki metastásisaiknál egyaránt megfelelően értékelhető scanninges képet hoz létre. A $^{197}HgCl_2$-nél meglévő differenciáltsági foktól függő téves negativ leletek alig fordulnak elő. Pajzsmirigytumor "hideg" göbének radiojóddal kombinált kettős szcintigráfiás vizsgálatára, a pajzsmirigytumort utánzó nyaki metastasisok vizsgálatára alkalmas.

2. táblázat

Izotóphalmozás a malignus mammatumorban

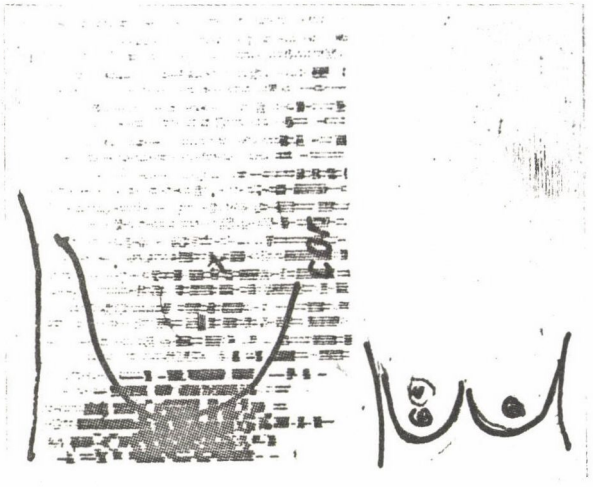
Izotóp	Szövettan	Tumorszövet és testháttér hányadosa	Izotóp beadása és mütét közti idő /nap/
300 µCi $^{203}HgCl_2$+EDTA-Cal	scirrhus	39,0	10
		16,9	10
		19,4	8
		57,5	7
	adenocc	22,7	7
		19,5	7
		4,9	7
	cc. alveolare	17,9	7
500 µCi ^{203}Hg-neohydrin	scirrhus	10,0	5
		6,0	1
	cc. alveolare	2,0	2

35 tüdődaganatos betegünk izotópvizsgálatánál azt a megállapitást tudtuk tenni, hogy a ^{203}Hg-neohydrin - főleg éretlensejtes tüdődaganatnál - a $^{203}HgCl_2$ + EDTA-Cal-lal egyenértékü. A különbség a mediastinalis nyirokcsomók detektálási lehetőségének javulásában van. A többször ismételhető $^{203}HgCl_2$ + EDTA-Cal-lal történő szcintigráfia a mediastinumban lévő nyirokcsomók helyének lokalizálására a vérben keringő izotóp távozása után is lehetőséget ad, lehetővé teszi a Stockes-gallért okozó leszoritás helyének megállapitását.



4. ábra

A mellkasi izzadmánytól fedett tüdődaganat $^{203}HgCl_2$ + EDTA után több nappal is pontosan kirajzolódik



5. ábra

Emlődaganat $^{203}HgCl_2$ + EDTA szcintigráfos képe

A mammatumorok ábrázolásánál $^{197}HgCl_2$-vel sok hibás pozitiv, ^{203}Hg-neohydrinnel pedig sok hibás negativ scanning képet kaptunk. A $^{203}HgCl_2$ + EDTA-Cal, a szövettani lelettől függetlenül, a tumorhoz erősen kötődő radionuklid hosszu felezési ideje miatt, a beadás utáni 3.-4. napon is jó rajzolatu képet adott /5. ábra/.

A sugárkezelés csökkentésére vonatkozó vérszint- és vizeletüritésvizsgálatok alapján Szabó megállapitása szerint a $^{203}HgCl_2$-vel egyidőben, majd azonos napon 2 h, 6 h, 24 h, 72 h-val az izotóp beadása után adott EDTA-Cal, a $HgCl_2$-vel komplexet alkotva, a veseterhelés szintjét jelentősen csökkenti. 300 µCi $^{203}HgCl_2$-EDTA-Cal jó detektálási lehetőség mellett a veseterhelés szempontjából 500 µCi, a diagnosztikában elfogadott értékü ^{203}Hg-neohydrinnek felel meg.

Állatkisérleteinkben a fenti mennyiség az első két héten a Bowmann-tokban és elsődleges kanyarulatos csatornákban okozott elváltozásokat. Unger egyéb izotópok vesére gyakorolt hatásának tanulmányozásával egyidőben a $^{203}HgCl_2$ késői veseelváltozásairól is be fog számolni.

300-500 µCi $^{203}HgCl_2$ izotópdiagnosztikában részesült tiz betegnél

egy-három évvel az izotópos tumordiagnosztika elvégzése után az ellenőrző veseclearance vizsgálatok normális értéket mutattak, a betegek vérnyomása változatlan maradt.

Miután a rendelkezésünkre álló különféle radiohigany vegyületek sajátosságait áttekintettük, daganatdiagnosztikai felhasználásukra a következő ajánlást tehetjük.

A $^{197}HgCl_2$ rejtett eredetü nyaki tumorok és száj-garattumorok metastasisainak kimutatása jól használható.

A ^{203}Hg-*neohydrin* /Chlormerodrin/ az agytumorok diagnosztikáján kivül a tüdődaganatok és hilusi metastásisaiknak kimutatására látszik alkalmasnak.

A $^{203}HgCl_2$ alkalmazásának körülményeit revizió alá kell venni. Ez a radionuklid-vegyület tüdő-, mamma-, száj- és garat-üri daganatok kimutatására látszik a legalkalmasabbnak. Nagy sugárterhelést okozó sajátossága miatt azonban csak EDTA-komplex alakjában használható. Az EDTA-Cal folyamatos adása mellett a veseterhelés elfogadható szintre szoritható le.

A több napon át tartó EDTA-Cal alkalmazása hospitalizációt igényel. Ezen hospitalizációs idő alatt a veseterhelés csökkentése mellett kiválasztható a scanning legkedvezőbb időpontja.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/482-487

A SZIVIZOMZAT PERFUZIÓJÁNAK NUKLEÁRIS MÓDSZERREL, EMBEREN VALÓ MÉRÉSÉNEK LEHETŐSÉGEIRŐL

Horváth M.*, Ludvigh K.*, Füst L-né**, Lengyel T.***, Szirtes L.***
*Állami Szivkórház, Balatonfüred
**Gamma Müvek, Budapest
***MTA Izotóp Intézete, Budapest

^{84}Rb-mal és ^{86}Rb-mal kapott eredmények méréstechnika, élettani és klinikai szempontjai.

О возможностях измерения перфузии сердечной мышцы радиоактивным методом на человеке
Хорват, М., Лудвиг, К., Фюшт, Л.нэ, Лендьел, Т., Сиртеш, Л.
Метрологические, физиологические и клинические аспекты результатов, полученных с помощью ^{84}Rb и ^{86}Rb.

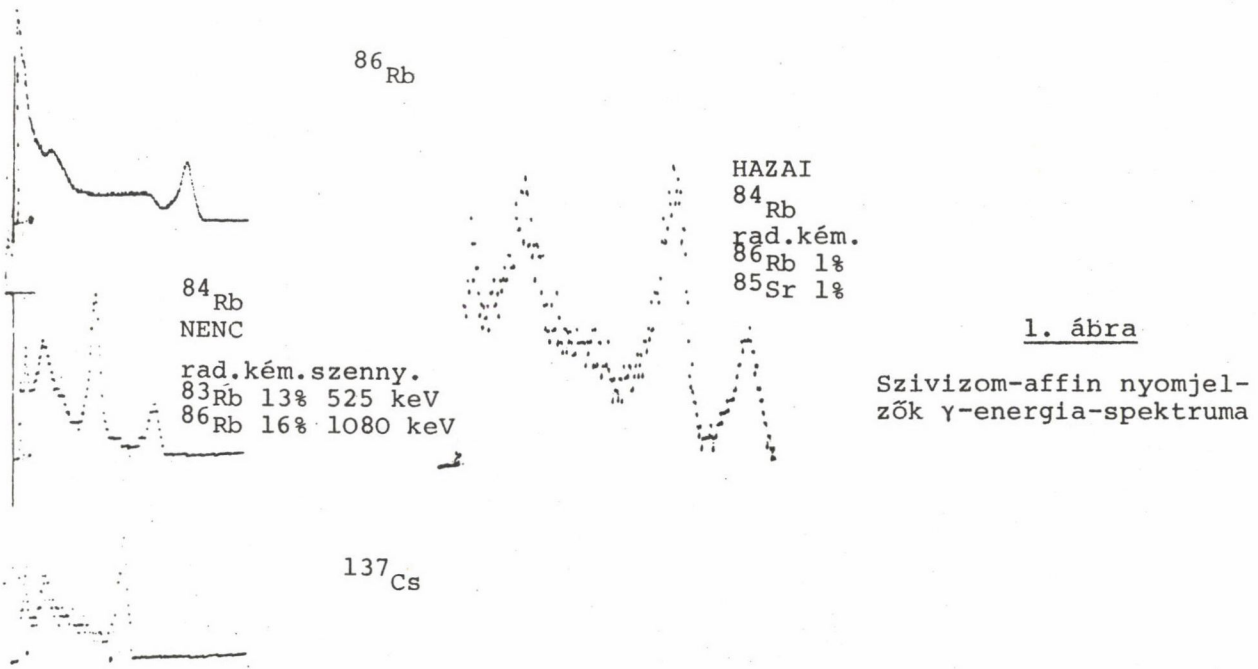
On the Possibilities of Measuring the Perfusion of Heart Musculature on Man by Nuclear Methods
Horváth, M., Ludvigh, K., Mrs.Füst, L., Lengyel, T., Szirtes, L.
Metrological, physiological and clinical aspects of results, obtained with ^{84}Rb and ^{86}Rb.

A kálium jellegü nyomjelzőkkel /^{42}K, ^{43}K, ^{86}Rb, ^{84}Rb és ^{137}Cs/ mért perctérfogat-frakció a szivizomzatban is kb. másfél percig tekinthető perfuziófüggőnek. Ezen izotópok intravénás injekciójával viszonylag kiméletesen, szelektiv koronar-katéterezés nélkül mérhető a kapilláris nutritiv flow, a vizsgálat közbeni folyamatos artériás vérmintavétel azonban elengedhetetlen. A szivizomzat egészének átlagolt áramlásáról tájékoztat, ezért az inhomogenitást csak jelentős differencia esetén emeli ki. A szivsuly ismeretének hiányában az eredményt a perctérfogatra vonatkoztatott % alapján ml/percben vagy, kliniko-farmakológiai vizsgálat esetén, a szivizomfrakció relativ változásaként adja.

Fő méréstechnikai probléma a szivüregben egyidőben jelenlévő véraktivitás korrekciója és az un. "effektiv-térfogat" behatárolása, amely történhet két nyomjelzővel, vagy - beszükitett vizsgálati követelményekkel - ujabban egyetlen nyomjelzővel, az un. dinamikus kalibráció utján. Mindkét lehetőséget

legjobban a Pisai Iskola[1] dolgozta ki; kettős indikátoruk ^{86}Rb és $R^{131}I$ SA volt, mig a francia Saclay Iskola[2] az utóbbi években ^{86}Rb-ot és $^{99}Tc^{m}$-mel jelzett saját vörösvértesteket szimultán injiciálva próbálkozott a szivüregi és koronar /illetve szivizom/ radiokardiogrammok szétválasztásával, méghozzá az arteriás vérmintavételt is megpróbálva kiiktatni. Pisában a méréstechnikát egyetlen detektorra, valamint az un. ikerszisztémára egyaránt kidolgozták, mig a koincidenciaelvre a detroiti Bing Iskolának[3] vannak legbővebb tapasztalatai, ezeket vette át a Leb vezette gráci munkacsoport is[4].

SZIVIZOM-ÁTÁRAMLÁS MÉRÉSÉRE HASZNÁLATOS SZIVIZOM-AFFIN NYOMJELZŐK



1. ábra

Szivizom-affin nyomjelzők γ-energia-spektruma

A két ^{84}Rb-spektrum közül az első hazai reaktortermék, mig a második a New England Nuclear Corporation /NENC/ ciklotron-produktuma, a ^{86}Rb pedig szintén Izotóp Intézetünk praparátuma. A NENC ^{84}Rb-ot szennyező ^{83}Rb 525 keV-es γ-energiája éppen a ^{84}Rb fotocsucsára esik. Tárgyilagosság kedvéért meg kell mondani, hogy a NENC ^{84}Rb-ot szennyező ^{83}Rb-ból és ^{86}Rb-ból származó véletlen /γ/ -koincidenciák méréstechnikailag nem hátrányosak, amennyiben csak a szivizomzatból származó hányadukat mérik.

A hazai ^{84}Rb-készitmény radiokémiailag sokkal tisztább, azonban hozama - még 10^{4} neutronfluxusban is - csekély. A hazai készitmény steril, ezzel szemben külföldről alig lehet steril, humán-injiciálható preparátumot szerezni. Sajnos mind a hazai, mind a NENC ^{84}Rb nagyon drága, a NENC-készitményt csak a NAÜ segitségével tudtuk megszerezni, és az Izotóp Intézetben kellett sterilizálni. A hazai termék drágaságának oka a drága ^{84}Sr-target. A ^{84}Rb ciklotronban való előállitásának hátránya a gázállapotu ^{84}Kr nehéz kezelhetősége.

A reaktorfolyamat: ^{84}Sr /n,p/ ^{84}Rb

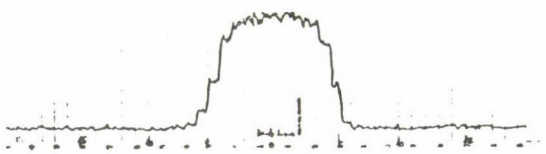
a ciklotronfolyamat: ^{84}Kr /p,n/ ^{84}Rb

Örvendetes, hogy a dinamikus kalibráció révén a szivizom-átáramlás mérése bármely kálium jellegü radioizotóppal lehetségessé vált. Love és munkatársai[5] állatkisérletes vizsgálatai alapján, a primer cirkuláció alatt bekövetkező extrakciós hányadából itélve, mégis a radioRb és radioK izotópokat kell kiemelni:

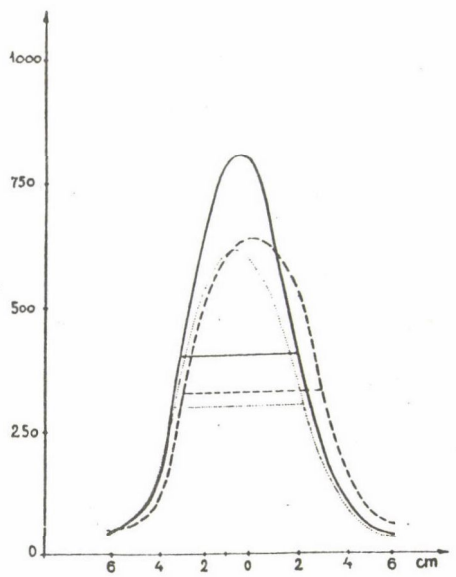
^{86}Rb 65%, ^{42}K 71%, ^{134}Cs 22%.

KOLLIMÁLÁSI KÖVETELMÉNYEK, DETEKTÁLÁSI HATÁSFOK

Az alig árnyékolt detektorokkal a háttér, nálunk 1 impulzus/min , és igy levegőben jel/zaj viszonyunk 1 µCi ^{84}Rb-ra jobb mint 100:1.



a/



b/

2. ábra

^{86}Rb és ^{84}Rb pontforrásokra felvett kollimátorkarakterisztikák

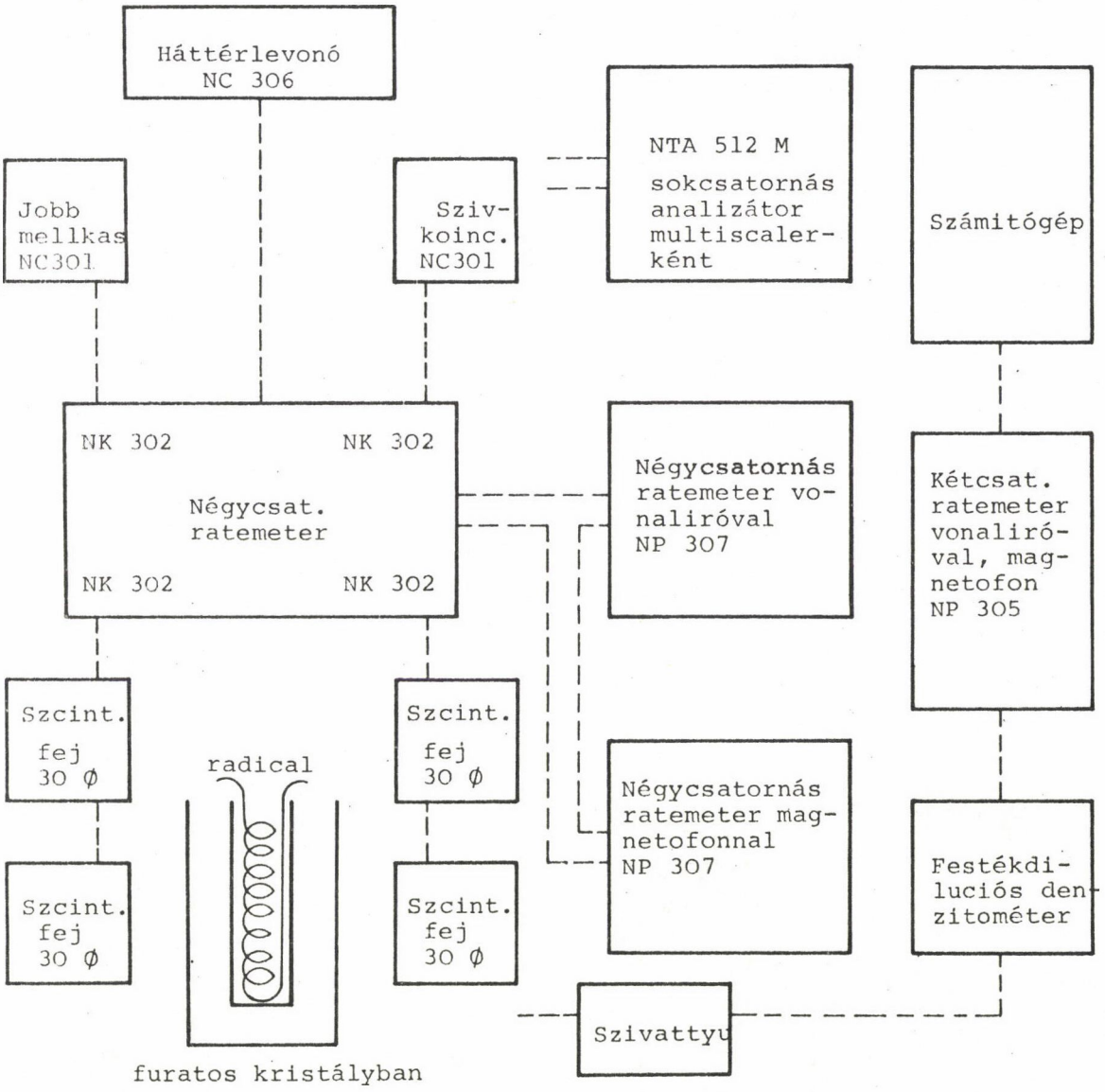
a/ ^{86}Rb aktiv bolus távolsága 30 cm. A kollimátorcsatorna centrumában az aktivitás 300 c/s

b/ ^{84}Rb kollimátorkarakterisztikája. A legnagyobb görbe a centrumvonalra, a két alacsonyabb a centrumvonal két oldalán 5 - 5 cm távolságra vonatkozik.

A 2. ábrán egyrészt ^{84}Rb-mal, másrészt ^{86}Rb-mal felvett kollimátor-karakterisztikát tüntetünk fel. Mindkettő az aktivitás-bolusra egyformán szelektiv, és in vivo is lehetővé teszi a szivizommérést leginkább zavaró májaktivitás elfogadható kirekesztését. A pozitrondiagram 30 µCi ^{84}Rb-mal 500 ns

koincidenciaidővel, 110 mm átmérőjü szcintillációs kristályokkal készült, a 35 cm távolságra lévő detektorok közt elhelyezett aktivitás levegőben való detektálási hatásfoka 26 imp /s volt. Az átlagban 2,5 cm vastag és 7 cm nyilásu félméteres ólomkollimátorban 25 cm-re visszahuzott 47 mm átmérőjü kristállyal 30 cm/sziv/távolságból 2,5 imp /μCi levegőbeni hatásfokot kaptunk ^{86}Rb-ra, a háttér ugyanakkor 10 imp /s-nek adódott.

MÉRŐKOMPLEXUM



3. ábra

Mérőkomplexum tömbvázlata

Mint koincidenciarendszerünk blokk-sémájából kiderül, mágnesszalagos tárolással egybekötve hazai készülékekből is felépithető /Gamma Müvek, Központi Fizikai Kutató Intézet, régebbi EFKI egységei/.

A RADIO^{Rb}-FRAKCIONÁLÁSOS SZIVIZOM-ÁTÁRAMLÁSI MÓDSZER ÉLETTANI ALAPJA

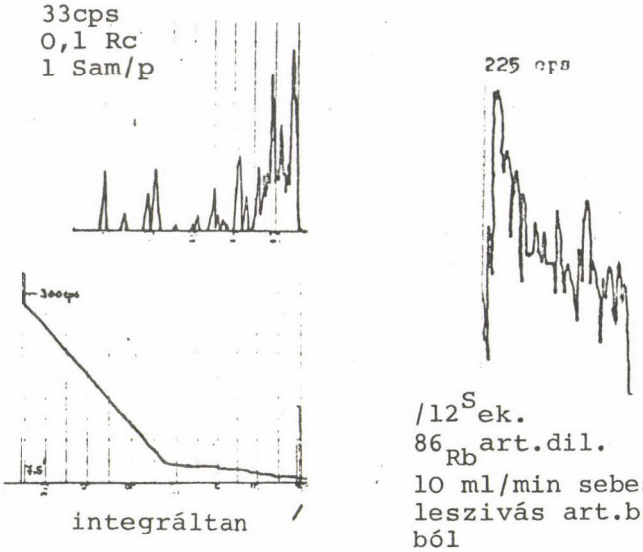
A kálium jellegü radioizotópokkal történő koszoruér-keringésmérő, illetve szivizom-átáramoltatást meghatározó módszer Sapirstein[6] által megállapitott élettani alapja azon tény, hogy a szervek - az agytól eltekintve - ezen izotópokat az injiciálástól számitott másfél percen belül, perctérfogat frakcióik arányában veszik fel. Mivel a szervezetben levő összaktivitás az injiciált aktivitással egyenlő, igy

A SZIVIZOM-ÁTÁRAMLÁS: PERCTÉRFOGAT = SZIVIZOM-AKTIVITÁS: ÖSSZAKTIVITÁS

A másik lényeges körülmény, hogy a perctérfogatot az artériás primer görbéből számitani lehet, miután a tüdőbe való kilépés csak jelentéktelen, 1 % körüli.

A mérőrendszer térfogatdimenzióját küvettakalibráció révén kapja: imp/s/µCi/ml-re. A dinamikus kalibráció a prekordiális detektorral és a furatos kristályban lévő átfolyó küvettával /egyszerübben radicoil-nak is nevezhető/ kapott méréseredmények összehangolását jelenti. Ennek feltétele, hogy a radicoilban hasonlóképpen kell elvégezni az injiciált aktivitásnak és a keringő, leszivott vérnek a mérését, másrészt a prekordiális primer görbét és a szivizomban végbemenő fixáció után szummált összaktivitást azonos egységekben kell kifejezni.

KLINIKAI VIZSGÁLATOK ÉS EREDMÉNYÜK



4. ábra

^{84}Rb pozitron-radiokardiogram és ^{86}Rb artériás dilució

Az ábra baloldalán 50 µCi ^{84}Rb-mal felvett, perifériás injiciálásu radiokardiogramot mutatunk be, melyen a csucsok γ-kardiográfiánál megszokott módon jól differenciálhatóak és 30 imp /s körüli nagyságrendüek. Alája megkisebbitve játszottuk vissza mágneses szalagról a prekordiális primer görbét, majd a regisztrátumot az 1. perc végétől szemléletesség kedvéért integrálva folytattuk. A 4. perc végéig az aktivitás lineárisan emelkedik, tehát praktikusan azonos momentán-értékekből ösz-

szegződik, később azonban, attól az időponttól kezdve, mikor az iránytangens hirtelen megváltozik, egyre inkább mutatkoznak a zavaró jelenségek a látótérben lévő és környező mellkasizomzat felől. Gyors és jelentős foku radioRb dusitásánál fogva különösen zavaró a máj közelsége, ezért biztonság kedvéért a detektálási centrumot a parasternalis területről kissé balra helyeztük. Ugyanezen ábra jobboldalán viszont 100 µCi ^{86}Rb-mal készült artériás dilucios görbe látható, a karverőérből 40 ml/min sebességgel leszivott vérből radicoil-ban felvéve.

Sajnos a karverőér nem mindig könnyü hozzáférhetősége miatt ezideig csupán 10 vizsgálatot tudtunk befejezni, melyeket éppen ezért nem is kivánunk egyedileg értékelni. Egyelőre annyit jegyzünk meg, hogy anginás rohammentes időszakban fekve vizsgálva ischaemiás szivbetegeinkben normál perctérfogatértékek mellett /$\bar{x}$=5800 ml, 2σ=$\pm$ 1100 ml/ - az irodalmi adatoknak megfelelően - nálunk is széles volt a nyugalmi tartomány, 5-8 % közti koronár-disztribucióval. A koronárfrakció reprodukálhatósága csak 20 % hibahatárral sikerült, ami sajnos már közelesik a 80-100 W terhelésre bekövetkező nutritiv perfuzionövekedés mértékéhez, és igy technikánk még további csiszolásra szorul.

KLINIKAI ÉRTÉKELÉS ÉS INDIKÁCIÓ

Ha a jelenlegi kollimálási nehézségek közt nem is lehet egyértelmü biztonsággal megmondani, hogy egy kapott érték mennyiben következménye a kedvezőbb geometriai hatásfoknak, a komplettebben befogott szivizom-tömegnek vagy megnövekedett specifikus perfuziónak, mégis örvendetes, hogy a beteg számára kiméletesebb kivitelezésben egy semi-invaziv screening tesztet kaptunk, mely önkontrollosan - a fentebbi problémák nagy részének automatikus kiesése révén - adekvát indikációs keretek közt használható lehet.

A vizsgálatok a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség támogatásával történtek.

IRODALOM

1.a *L.Donato, A.Maseri,* Radioaktive Isotope in Klinik und Forschung 1970, Urban Schwarzenberg, München-Berlin-Wien.

1.b *A.Maseri,* et al., J.Nucl.Biol.Med.15 /1971/ 87

2. *J.di Matteo,* et al., Arch.Mal.Coeur 63 /1970/ 1657

3. *D.Böttcher,* et al., Z.Kreislaufforsch. 58 /1969/ 706

4. *G.Leb, O.Eber,* Radioaktive Isotope in Klinik und Forschung 1970, Urban Schwarzenberg, München-Berlin-Wien.

5. *W.D.Love,* et al., Amer.Heart J. 76 /1968/ 353

6. *L.A.Sapirstein,* Amer.J.Physiol. 193 /1958/ 161

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/488-491

KÁLIUM-43-MAL JELZETT GYÓGYÁSZATI KÁLIUM-KLORID ELŐÁLLÍTÁSA

Törkő J., Szirtes L.
MTA Izotóp Intézete, Budapest

A reaktortermék ^{43}K kationcserés elválasztása a célanyagtól. Radionuklidos tisztasága nagyobb 99,9%-nál.

Получение медицинского препарата хлористого калия, меченного калием-43
Тёркё, Я., Сиртеш, Л.
Разделение реакторного продукта ^{43}K от таргета катионным обменом. Радионуклидная чистота материала выше 99,9%.

Preparation of Medical Potassium Chloride, Labelled with Potassium-43
Törkő, J., Szirtes, L.
Separation of reactor product ^{43}K from target material by kation exchange. The radionuclidic purity of end product is higher than 99,9%.

Az orvosi praxisban gyakori feladat az infarktus következtében előállt szivizom-károsodás mértékének meghatározása és topográfiai körülhatárolása. Néhány alkálifém izotóppal, elsősorban ^{86}Rb-mal és ^{131}Cs-mal jelzett készitményt már kipróbáltak erre a célra, de egyik sem adott teljesen kielégitő eredményt. Hurley és munkatársai 1971-ben megjelent munkájukban arról számoltak be[1], hogy ^{43}K alkalmazásával értékelhető szivscan kapható. Tapasztalataik szerint 0,5 mCi ^{43}KCl a felvételhez elegendő, amely ~ 0,35 rad átlagos dózisterhelést jelent.

A ^{43}K fontosabb nukleáris adatait az 1. táblázatban foglaltuk össze[2].

A ^{43}K iránt a jövőben jelentkező esetleges igény kielégitése céljából kisérleteket végeztünk ^{43}K-mal jelzett, humán célokra is alkalmazható preparátum előállitására. A ^{43}K reaktorkörülmények mellett a

$$^{43}Ca/\ n,p/\ ^{43}K$$

magreakció szerint képződik.

Ebből adódik, hogy az előállitás során a legnagyobb probléma a hordozómentes formában lévő ^{43}K közel kvantitativ elválasztása a makromennyiségü

célanyagtól. Ugyanakkor biztositani kell azt is, hogy a végtermék megfeleljen az orvosi felhasználásu készitményekkel szemben támasztott követelményeknek /radionuklidos tisztaság, sterilitás, stb./.

1. táblázat

A ^{43}K izotóp főbb jellemzői

Felezési idő, $T_{1/2}$	22 h
Dózisállandó	5,6 $r.cm^2h^{-1}mCi^{-1}$
β-részecskék, MeV	0,24 /5%/; 0,46 /5%/ 0,83 /83%/; 1,22 /5%/ 0,84 /2%/
γ-sugárzás, MeV	0,22 /3%/; 0,37 /85%/ 0,39 /7%/; 0,39 /11%/ 0,59 /13%/; 0,6 /81%/
Keletkezési magreakció	$^{43}Ca/n,p/^{43}K$
Hatáskeresztmetszet /barn/	$3,4.10^{-3}$
A ^{43}Ca természetes előfordulása, %	0,145

Az ioncserés elválasztási lehetőségek tanulmányozása során szerzett korábbi tapasztalataink alapján arra a megállapitásra jutottunk, hogy a feladat az ioncsere módszerével megoldható. AZ ioncsere alkalmazásakor két lehetőség jöhetett szóba:

a/ elválasztás kationcserélőn, eluciós kromatográfia segitségével;

b/ elválasztás megfelelő komplexképző jelenlétében.

Az előkisérletek eredményei alapján a második lehetőség mellett döntöttünk. Polifunkciós komplexképző alkalmazásakor előálló töltéstulkompenzáció következtében ugyanis további két lehetőség közül választhattunk:

a/ anioncserélő alkalmazása /megkötődik az alkáli földfém komplex/;

b/ kationcserélő alkalmazása /megkötődik az alkáli fém ion/.

A kedvezőbb oszlopméret és kisebb időszükséglet miatt az elválasztást kationcserélő oszlopon, a következők szerint valósitottuk meg[4].

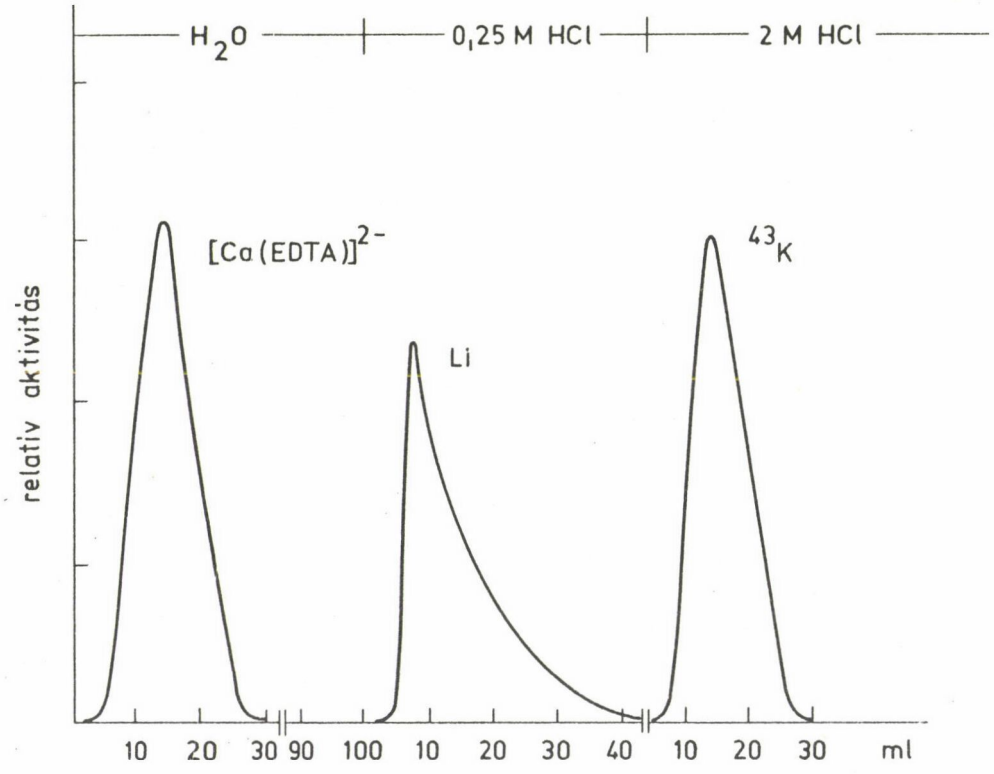
A besugárzott - ^{43}Ca izotópban 32%-ra dusitott - $CaCO_3$ célanyagot 2 M sósavban feloldottuk, majd szárazra pároltuk. A bepárlási maradékot számitott mennyiségü Li_4EDTA oldattal felvettük, és a pH-t LiOH-val kb. 10-re állitottuk be. Ennél a pH-nál a kalcium $Ca/EDTA/^{2-}$ komplexet képez, amelynek stabilitási állandója log K = 8,8[3].

Ezt az oldatot 0,6x15 cm méretü DOWEX-50x12 litium formáju oszlopra vittük. A $Ca/EDTA/^{2-}$ negativ töltése következtében az oszlopon átfolyik,

a ^{43}K viszont kationként mennyiségileg megkötődik.

A célanyag átfolyása után az oszlopot, a komplex teljes eltávolítása végett, desztillált vizzel kimostuk, majd az alkálifém ionokat különböző koncentrációju sósavoldattal eluáltuk.

Az 1. ábra az eluciós görbét mutatja.



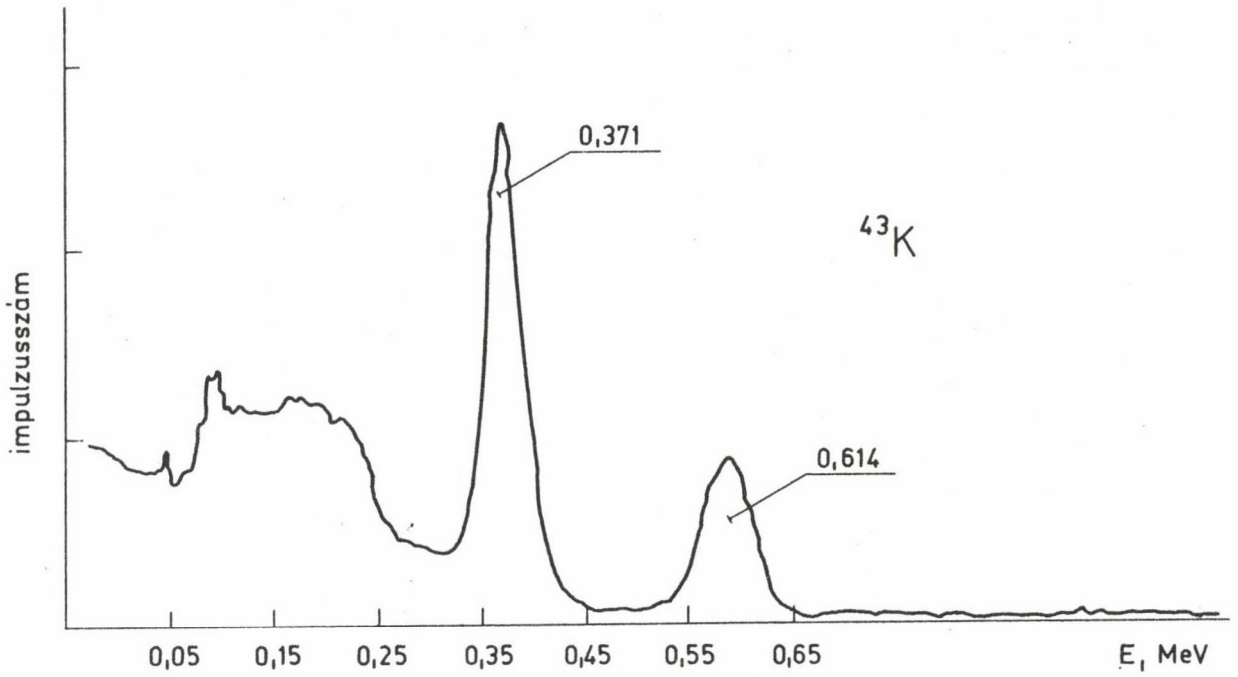
1. ábra

A káliumelválasztás eluciós görbéje

Az elválasztás szelektivitását a 2 M sósavas frakcióban lévő ^{43}K felezési idejének mérésével, illetve γ-spektrum alapján ellenőriztük. A 2. ábra a ^{43}K 256-csatornás analizátorral felvett γ-spektrumát mutatja.

Az elválasztás hatásfokát ismert aktivitásu ^{42}K-mal modellezett elválasztások adataiból határoztuk meg. A többször megismételt elválasztások során szerzett tapasztalatok azt mutatták, hogy a magreakcióval képződött ^{43}K gyakorlatilag teljes mennyisége elválasztható a célanyagtól.

A gyógyászati célokra alkalmas preparátumhoz ugy jutottunk, hogy az eluátumot szárazra pároltuk, majd a maradékot néhány ml fiziológiás konyhasóoldattal felvettük. Végül az oldatot szürés után a szokásos módon sterileztük.



2. ábra

A kapott ^{43}K izotóp γ-spektruma

A preparátum radionuklidos tisztasága nagyobb mint 99,9%. Az izotóp felezési idejét 22,4 órának találtuk, ami jól egyezik az irodalmi adatokkal[2].

Összegezve az elmondottakat megállapitható, hogy az ismertetett módszer alkalmas ^{43}K-mal jelzett gyógyászati készitmények előállitására. A javasolt eljárás előnye egyszerüségében és gyorsaságában rejlik.

IRODALOM

1. *Hurley, P.J.*, et al., Nucl. Med. 12 /1971/ 516
2. *Lederer, C.M., Hollander, J.M., Perlman, I.*, Table of Isotopes /6th Ed./, J. Wiley, New York, 1968
3. *Martell, A.E.*, Stability Constants of Metal-Ion Complexes, The Chemical Society, London, 1964
4. *Törkö J., Szirtes L.*, Radiochem. Radioanal. Letters, 11 /1972/ 147

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/492-496

POZITIV TUMORSZCINTIGRÁFIÁS VIZSGÁLATOK ^{67}Ga-CITRÁTTAL

Zsebők Z., Mártonffy K., Esztergályos J.
Semmelweis Orvostudományi Egyetem Radiológiai Klinikája, Budapest

16 betegen végzett vizsgálatok. A vegyület nem ideális tumorszcintigráfiára, de az eddig ismertek között a legjobb. Nehezen hozzáférhető testtájakon megkönnyiti a daganat, ill. áttét kimutatását.

Позитивные тумор-сцинтиграфические исследования с цитратом ^{67}Ga
Жебёк, З., Мартонфи, К., Эстергаёш, Я.
Испытания, совершенные на 16 больных. Соединение является лучшим, хотя не идеальным для сцинтиграфии опухолей. Применение его облегчает обнаружение опухолей и метастазов, помещенных в труднодоступных местах тела.

Positive Tumor Scintigraphic Examinations with ^{67}Ga-Citrate
Zsebők, Z., Mártonffy, K., Esztergályos, J.
Examinations on 16 patients. The compound, the best though not ideal,for tumor scintigraphy, facilitates the detection of tumors and metastases at not readily accessible parts of the body.

A tumorok izotópvizsgálatokkal történő kimutatása változatlanul diagnosztikus tevékenységünk egyik fő célja.

Mint ismeretes, a feladatot mindmáig nem sikerült teljes mértékben megoldani, bár igen sok, tumorszcintigráfiára alkalmas izotóppal jelzett vegyületet állitottok elő.

A daganatot pozitiv és negativ tumorszcintigramnal lehet ábrázolni.

Pozitiv tumorszcintigramot kapunk, ha a daganatban a környező szövetekhez viszonyitva számottevően nagyobb a radioaktiv anyag koncentrációja, és ennek következtében a daganat a szcintigramon közvetlenül ábrázolódik. A negativ tumorszcintigramon a daganat aktivitáshiányként jelenik meg.

Pozitiv tumorszcintigráfiára alkalmas izotóp pl. a ^{203}Hg és ^{197}Hg,(klórmerodrint /Neohydrin/ jeleznek velük), a ^{75}Se, Na-selenit vagy selenomethionin formájában, a ^{131}I és a ^{125}I (albuminhoz vagy fibrinogénhez kötve), a $^{99}Tc^{m}$, mint pertechnetát, valamint az ^{113}In (kloridként vagy EDTA-hoz kötve) és a ^{67}Ga, mint citrátsó.

A ^{67}Ga ciklotrontermék, fizikai felezési ideje 78 óra, elektronbefogással bomlik, γ-sugárzó.

A galliumot kezdetben csontszcintigráfiás vizsgálatokhoz alkalmazták, miután a ^{67}Ga-ről Dudley és munkatársai már 1949-ben kimutatták, hogy állatoknál az osteogenesis helyén halmozódik fel.

Edwards és Hayes megállapitották, hogy a ^{67}Ga-citrát rendkivül tumoraffinis, de sem a ^{67}Ga, sem a fent felsorolt többi anyag nem tumorspecifikus. Állati daganatokban azonban mind az abszolut tumorkoncentráció, mind a tumoros és nem tumoros szöveti koncentráció arányát tekintve a ^{67}Ga-citrát jobban dusul, mint a ^{75}Se-szelenomethionin, a ^{203}Hg-Neohydrin vagy a ^{125}I-albumin.

Szcintigráfiás vizsgálathoz embernek 2-3 mCi ^{67}Ga-citrátot adnak i.v., s az injekció adása után 2-5 nappal készülnek a felvételek.

Számos munkacsoport ^{67}Ga-szcintigráfiás eredményeit ismerhettük meg az elmult 4 év alatt.

Tekintettel arra, hogy a ^{67}Ga-citrát drága, héhány nagy európai kutatóintézet, illetve klinika hasonló technikai feltételek mellett végzett vizsgálatait együttesen elemezte.

Az idevágó kutatások célja egyrészt az, hogy felderitsék a galliumfelhalmozódás élettani alapjait, másrészt, hogy megállapitsák, van-e különbség a különböző felépitésü szövettani daganatok galliumfelvételében.

A Radiológiai Klinikán 1972-ben 16 betegnél készitettünk szcintigráfiás felvételt, 2 mCi ^{67}Ga-citrát /Amersham/ i.v. adása után, 48, illetve 72 órával, Picker Magnascanner III. és SELO Superscanner DS 7/5B berendezésekkel.

1. táblázat

		Pozitiv szcintigram	
Tüdőtumor	5	4	
Tüdőmetastasis	1	1	
M. Hodgkin	2	2	
Lymphoreticularis sc.*	1	0	
Emlő cc.	1	1	
Emlő tu.	1	0	A klinikai kép nem utalt daganatra. Mütét nem történt.
Gyomor cc.	2	0	
Nyelőcső tu.?	1	0	Klinikailag cardiospasmusnak bizonyult.
M. Boeck?	1	1	
Thymoma mal.?	1	0	Klinikailag autoimmun pancytopeniának bizonyult.
	16	9	

* A vizsgálat idején cytostatikus kezelés alatt állt.

Eredményeink az irodalmi adatokkal egyeznek. Elismerésre méltó, hogy azon tüdődaganatos betegünknél, akinél a szcintigram negativ volt, a szövettani vizsgálat cc solidum macrocellulare jelenlétét bizonyitotta.

Mindkét gyomor cc-s betegünknél negativ volt a szcintigram.

Lymphoreticularis sc-ban szenvedő betegünknél klinikailag májmetastasist észleltünk. Miután a vizsgálat idején cytostaticus kezelés alatt állt, nem meglepő, hogy az epigastriumot kitöltő daganat /boncolás nem történt, mivel a beteg nem gyógyintézetben halt meg/ ^{67}Ga-mal nem ábrázolódott.

Miután a ^{67}Ga egészséges májban is dusul, általában igen nehéz a májmetastasisok, illetve primer májdaganatok ábrázolása. ^{198}Au - ^{99}Tc^{m} - vagy ^{113}In^{m}-kolloiddal jól kimutathatók a máj azon területei, ahol nincs RES tevékenység, de egyedül a szcintigram alapján nem dönthető el, hogy cystáról vagy jó-, illetve rosszindulatu daganatról van-e szó.

Az eddigi Ga-szcintigráfiás eredmények nem egyértelmüek, hiszen megfigyelték, hogy ha a máj valamely részlete ^{99}Tc^{m} kolloiddal "hideg" területként jelent meg, akkor ugyanott a Ga-felhalmozás az esetek egyrészében csökkent volt, mig más esetben éppen fokozott.

Ujabb vizsgálatok arra utalnak, hogy a rosszindulatu májdaganatok és májtályogok egyaránt dusitják a ^{67}Ga-ot, igy egyéb jóindulatu fokális szabályozásokból elkülönithetők.

A cirrhotikus májszövet is halmozza a ^{67}Ga-ot. Suzuki és munkatársai ugy vélik, hogy a máj esetében a szövettani felépitésnek is van szerepe a fokozott ^{67}Ga-felvételben, igy pl. adenocc. májmetastasisai alig, vagy egyáltalában nem vesznek fel galliumot.

Néhány olyan esetet szeretnénk ismertetni, melyek a Ga-szcintigráfia előnyeit bizonyitják.

ESETISMERTETÉS

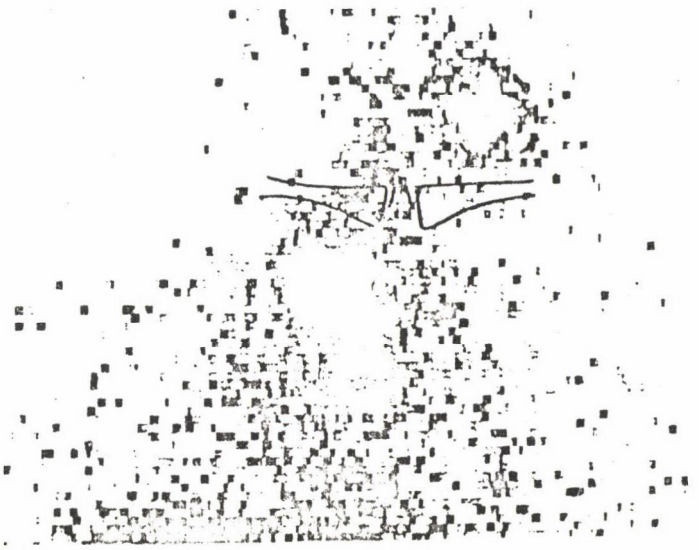
L. A. 55 éves férfi. Nehéz légzés, száraz köhögés, fogyás miatt került sor klinikai felvételre. Röntgenvizsgálatkor a jobb hilus felett almányi daganat volt látható /1/a ábra/, mely a szcintigramon egyértelmüen ábrázolódik. Jól látható, hogy jelentős a ^{67}Ga-felhalmozás a májban. A daganat a szövettani vizsgálattal cc. planocellularenak bizonyult.

Sz. P. 21 éves férfi. A szcintigráfiás vizsgálat előtt 2 hónappal ismerték fel, hogy Hodgkin-kórban szenved. Két alkalommal már részesült sugárkezelésben /I széria nyak jobb és bal oldala 3000-3000 R, II széria jobb és bal laterális mellkasi mező 5200-5200 R és jobb és bal hilustáj ventrális mezőből 4400-4400 R./ A szcintigráfiás vizsgálat előtt néhány nappal a jobb hilustájon férfiökölnyi, éles szélü daganatárnyékot figyeltünk meg röntgenvizsgálattal és a nyak bal oldalán tojásnyi, rendkivül fájdalmas terimét tapintottunk. A szcintigramon /2. ábra/ aktivitásfokozódás formájában jól ábrázolódik mind a jobb hilus körüli, mind a nyaki elváltozás.

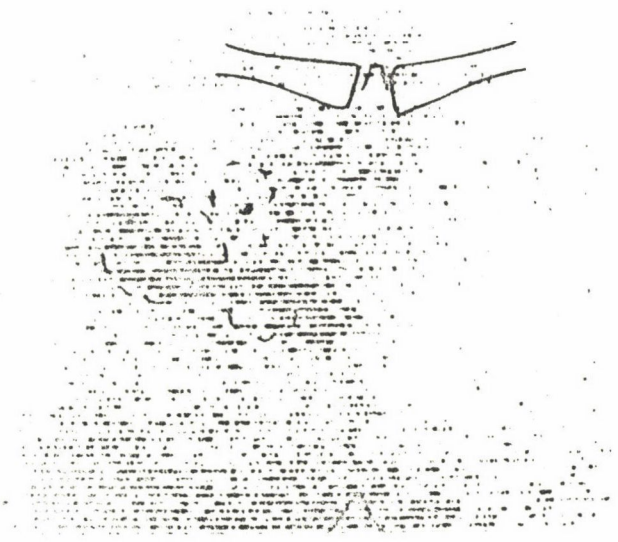
V. Gy-né 62 éves nő. 1 év előtt észlelte, hogy jobb emlőjének mediális felében fájdalmatlan, kemény csomó van. Majd 6 hónap mulva több apró, fájdalmatlan csomót figyelt meg, melyek felett a bőr lila, feszes volt. Az emlőbimbó részben behuzódott. Ekkor fordult először orvoshoz. Klinikánkra történt felvételekor a jobb hónaljban kisdiónyi, porckemény resistentiát tapintottunk, a jobb supraclaviumban pedig babnyi resistentiát észleltünk.
A szcintigramon a tapintható göbök vetületében aktivitásfokozódás figyelhető meg /3. ábra/.
Ezt követően a beteg sugárkezelésben és chemotherápiában részesült.
A szcintigráfiás vizsgálat után 6 héttel már disszeminált csontmetastasisokat mutatott a röntgenvizsgálat a gerinc és medence területén, s 2 hónap mulva a beteg exitált. A boncolás testszerte, minden szervben adenocc. anaplasticum disseminált metastasisait mutatott ki, a primer tumor, feltehetőleg, az emlőben volt.



1/a. ábra



2. ábra



3. ábra

Az eddig közölt eredmények arra utalnak, hogy a különböző daganatok nem egyformán halmozzák fel a ^{67}Ga-ot, sőt pl. leukaemiás infiltrátum, néhány solid rosszindulatu daganat - igy a pajzsmirigy medullaris cc.-ja -, jóindulatu daganatok, szcintigráfiával nem mutathatók ki. Gyomor cc-s betegeknél Higasi és munkatársai nem tudtak dusulást megfigyelni, mig Langhammer és munkatársai 13 esetben 8-nál pozitiv szcintigramot kaptak. A kórismézés szempontjából rendkivül kedvezőtlen az a tény, hogy a gyulladásos szövetek is fokozott ^{67}Ga-felvételt mutatnak.

Mindeddig ismeretlen a galliumfelhalmozás élettani alapja, igy arra sem tudunk magyarázatot adni, hogy megsugárzás, illetve chemotherápia után az addig ^{67}Ga-mal pozitiv daganatok általában már nem jelenithetők meg a szcintigramon. Közölnek azonban egy olyan esetet is, hogy 5000 R-el végrehajtott sugárkezelés után a daganat visszafejlődött, a szcintigram mégis pozitiv maradt.

Langhammer és munkatársai az emlő és a RES daganatainál következetesen azt észlelték, hogy a kezelést követően a daganatok már nem halmozták a galliumot, eseteik számát azonban nem tartják kielégitőnek, s ezirányu vizsgálataikat tovább folytatják. Ugyanez vonatkozik az antibiotikumokkal vagy antituberculotikus szerekkel kezelt specifikus vagy aspecifikus gyulladásos folyamatokra is.

Várhatóan pozitiv eredményt ad a ^{67}Ga-szcintigráfia bronchus cc., pajzsmirigy cc. /kivéve a medulláris cc.-t/, gyomor cc., malignus melanoma és malignus RES betegségek diagnosztikájában.

Emlitésreméltó, hogy sem bronchus cc.-nál, sem egyéb daganatoknál nem találtak összefüggést a szövettani szerkezet és a ^{67}Ga-felhalmozás között.

Mikroautoradiográfiás vizsgálatok adatai szerint patkányból és egérből származó élő sejteknél a ^{67}Ga a cytoplazmában helyezkedik el. Kimutatták, hogy az élő daganatsejtekben jobban dusul a gallium, mint a nekrotikus daganatsejtekben. Quinn utal arra, hogy ez a felismerés nemcsak a klinikai diagnosztikában lehet hasznos, hanem talán a rosszindulatu elváltozások sajátságainak tanulmányozásában is.

Elképzelhető, hogy a Ga-felhalmozásban többek közt szerepet játszhat a daganatok bő vérellátása, valamint az a körülmény, hogy a következményes gyulladás folytán megváltozik a permeabilitás a daganatban magában és a környezetében.

Mindezek alapján nyilvánvaló, hogy a ^{67}Ga-citrát sem ideális tumorszcintigráfiás vizsgálatok céljára, de az eddig ismert anyagok között a legjobb. A ^{67}Ga-szcintigráfiát ma ugy értékelik, hogy ismert hátrányai mellett előnye, hogy egyéb vizsgáló eljárások számára nehezen hozzáférhető testtájakon /májkapu, mediastinum, mesenteriális nyirokcsomók/ megkönnyiti a daganat, illetve az áttét kimutatását. Lehetővé teszi az optimális megsugárzási mező kiválasztását. Bár meggondolásokkal, de bizonyos esetekben mégis következtethetünk a sugárkezelés hatékonyságára.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

309024

IV

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 9. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE



IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 9. SZÁM

BUDAPEST 1973. SZEPTEMBER

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

S.P. Kasemsanta

International Atomic Energy Agency, Vienna - A-1011, Kärntnerring 11

Lendvay János, Pertik Béláné

Fővárosi Közegészségügyi és Járványügyi Állomás, 1138 Budapest Váci ut 174.

J. Nagy Éva

MTA Orvosradiológiai Akadémiai Tanszéki Kutatócsoport, 1082 Budapest Üllői ut 78.

Uchrin György

MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest, Pf.77.

Varga László, Kubászova Tamara

Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézete, 1221 Budapest Pentz K.u.5.

Antoni Ferenc, az orvostudományok doktora,

Semmelweis Orvostudományi Egyetem Orvosi Vegytani Intézete, 1088 Budapest Puskin u.9.

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-7585

1973. 9. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

A nukleáris technika alkalmazása az acél- és fémalapanyag-termelésben..... 501
S.P. Kasemsanta

Ядерные методы в промышленности металлических основных материалов

Nuclear Techniques in the Basic Metal Industries

Biológiai minták preparativ hibaforrásai folyadékszcintillációs méréseknél..... 512
Lendvay J., Pertik B-né, J. Nagy É.

Препарационные причины ошибок при измерении биологических проб с помощью жидких сцинтилляторов

Preparative Error Sources in Liquid Scintillation Measurement of Biological Samples

A radioaktiv izotópok müszeres és nyomjelzéstechnikai ipari alkalmazásaiból származó sugárterhelés..... 521
Uchrin Gy.

Радиационная опасность использования в промышленности ядерных приборов и метода меченых атомов

Exposure from the Industrial Use of Radioactive Isotopes in Nuclear Instruments and Labelling Techniques

Radioaktiv krómmal /^{51}Cr/ jelzett heparin viselkedése biológiai rendszerben..... 534
Varga L., Kubászova T., Antoni F.

Поведение хепарина, меченного радиоактивным хромом /^{51}Cr/ в биологической системе

Heparin, Labelled with Radiochromate /^{51}Cr/ in Biological System

HIREK..... 540

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/501-511

A NUKLEÁRIS TECHNIKA ALKALMAZÁSA AZ ACÉL- ÉS FÉMALAPANYAG-TERMELÉSBEN*

S.P. Kasemsanta

Beszámoló a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 1973 július 31 - augusztus 4 között Helsinkiben rendezett szimpoziumáról.

Ядерные методы в промышленности металлических основных материалов
Касемсанта, С.П.
Обзор симпозиума МАГАТЭ в Хельсинки, 31 июля - 4 августа 1973 г.

Nuclear Techniques in the Basic Metal Industries
Kasemsanta, S.P.
Review of an IAEA symposium, held in Helsinki, 31. July - 4 August 1973

Nukleáris tudományokon alapuló módszereket már két évtizede alkalmaznak az acél- és fémalapanyag-előállitó ipar egyes területein. Az izotóptechnológia legujabb fejlesztései, a két másik szorosan kapcsolódó területtel: az elektronikával és a számitógép-technológiával együtt, ma az alkalmazási lehetőségek mind szélesebb választékát nyujtják az iparnak, az anyagelemzés és -kezelés, a folyamatok mérése és optimatizálása, a minőségellenőrzés és a gyártási nehézségek megoldása területén, valamint a kutatásban.

Az alapanyagtermelő iparokban a gyártási folyamatok, berendezések és módszerek dinamikus változásai az üzemeltetés minden fokozatában fellépnek, az ércfeldolgozástól vagy olvasztástól a befejezett acél- és fémtermékek gyártásáig. A változások ösztönzője az anyagok hatékonyabb alkalmazásának követelménye, a költségek megtakaritása, a jobb termékminőség elérése és a legsürgetőbb követelmény: a környezet megvédése az ipari szennyeződésektől.

*A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség hozzájárulásával az Atomic Energy Review c. folyóiratból /lo, 761 /1972/ átvett közlemény

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség, tekintettel az izotóp- és a sugártechnológia egyre növekvő szerepére, az acél- és fémelőállitó iparban 1972. julius 31. és augusztus 4-e között Helsinkiben szimpóziumot rendezett, amelyen 22 országból 7o szakember és 4 nemzetközi szervezet vett részt. A konferencián 9 technikai szekció keretében 36 előadás és ezeket követő vita hangzott el. A témák az alkalmazási területeknek megfelelően 5 körbe csoportosultak: 1. általános jelentőségü módszerek és müszerezés az acél- és fémalapanyag-előállitó iparban; 2. ércfeldolgozás; 3. olvasztás, tisztitás, öntés és ötvözési müveletek; 4. az acél- és fémalapanyagu késztermékek gyártása és 5. fejlesztési és kutatási alkalmazások.

Különösen érdekes az, hogy a radioizotóp-alkalmazások nagy csoportja ezen a területen a laboratóriumokból már kikerült az ipari üzemekbe, mint például a jól ismert on-line rendszerben folyó izotópos mérések, melyek, mint a folyamatellenőrzési rendszerek részei, jelentősen elterjedtek. Az izotópos nyomjelzéstechnikában az utóbbi években jelentősebb uj fejlődés ugyan nem történt, de az alkalmazások körének jelentős kiterjesztésével lépten-nyomon találkozhatunk. A laboratóriumokban a röntgensugárzáson, a neutron- és nyomjelzéstechnikán alapuló módszerek már jól megalapozottak az analitikai alkalmazásoknál. A bonyolultabb nukleáris fizikai kutatásokból eredő módszerek, mint a γ-sugárrezonancia-szórás, a prompt magreakciók és atomreakciók, a nehéz részecskék által indukált reakciók, az Auger-elektronemisszió és a Mössbauer-effektus számos felhasználásával viszont az ipari vonatkozásu kutatásban találkozunk.

ÁLTALÁNOS JELENTŐSÉGŰ TECHNIKÁK ÉS MŰSZEREZÉS

A nem diszperz röntgenfluoreszcencia-analizátorok használatát az acél- és fémipar összes fokozatában, az ércfeldolgozástól, olvasztástól és tisztitástól kezdve a végtermék minőségi ellenőrzéséig, Cameron és Papez [1] /Egyesült Királyság/ ismertette. A különféle alkalmazásokhoz számos formában állnak analizátorok rendelkezésre, hordozható, szállitható, laboratóriumi vagy on-line kivitelben egyaránt. Megtárgyalták az analizátorok különféle tipusait, alkalmazásukat és a pontosságra vonatkozó adatait.

Pierce [1] /Anglia/ a nem-reaktor jellegü neutronforrások néhány felhasználását irta le, beleértve a ^{252}Cf-et, a fémek és ötvöző anyagok vizsgálatánál. Lundan és Mattila [3] /Finnország/ ismertette a radioizotópok neutronaktiválásának /NA/ és a röntgenfluoreszcencia /XRF/ alkalmazásának különleges eseteit, valamint a kombinált NA/XRF analizátorrendszert a folyamatellenőrzésben.

Eltérően az acélipartól, a /nem vastartalmu/ fémeket feldolgozó iparágakban sokkal ujabb keletü és a tárgykörben lényegesen kevesebb információ áll rendelkezésre. A fémiparban alkalmazott nukleáris technikák jelenlegi fejlődési foka megitélhető Kato, Hirayama, Mukai és mások felméréseiből [4], akik ismer-

tették a japán aluminiumiparban folyó munkákat: a nyomjelzéstechnika, a gyorsneutron-aktiváció és más nukleáris technológiák alkalmazását, az aluminium és ötvözeteinek minden termelési fázisában.

A nukleáris szállitószalag-mérleg és on-line nukleáris nedvességmérők mind nagyobb elismerésben részesülnek az acél- és fémiparban mindenütt, de különösen az ércfeldolgozásnál és az acélgyártásnál. Boyce, Cameron és Piper [5] /Anglia/ összehasonlitotta a nukleáris és az elektromechanikai szalagmérlegek adatait, elemezte a tervezési követelményeket és ismertette az uj fejlesztési eredményeket. Hold, Morgan és Williams [6] /Anglia/ a nukleáris szállitószalag-mérlegeket a felhasználók szemszögéből vizsgálta és ismertette a két különböző mérlegmodel üzempróbáinak eredményeit. A különféle tipusu on-line neutronnedvesség-mérők tervezését és használatát az acéliparban Machaj /Lengyelország/ és Papez,valamint Cameron [7] /Anglia/ ismertették. Bemutattak egy uj prototipust a szállitószalagokon lévő szinterkeverék mérésére. A nukleáris mérők egy másik tipusát Frevert és Stehno [8] Ausztriában fejlesztette ki, a szinterércek folyamatos, érintésnélküli nedvességmérésére szállitószalagon. Ez utóbbi mérőről közölték, hogy gyakorlatilag nem befolyásolja a szinterérc összetétele és rétegvastagsága. Próbaüzemi tapasztalatot csak keveset közöltek. Grieser és Klein [9] /NSZK/ a neutron-nedvességmérők kalibrációját elemezték a mérőbunkerekben történő kokszmérésnél, és uj hitelesitési módszert ajánlottak.

ÉRCFELDOLGOZÁS

Watt és Howarth [10] áttekintést adott az ausztráliai ércfeldolgozó üzemek módszereiről és folyamatra kapcsolt analiziseiről, melyek radioizotópos és röntgentechnikákat használnak. A feldolgozó müveleteknél, amelyeken nagy mennyiségü értékes érc fut át, a hatásfok kismértékü javitása is lényeges megtakaritást és haszonnövelést eredményez. A fémkoncentráció folyamatra kapcsolt elemzése az áramlás és meddő müveleteinél lehetővé teszi a majdnem azonnali észlelést és a folyamat zavarainak gyors korrekcióját, ennél fogva a folyamatellenőrzés igen értékes eszköze. A radioizotópos analizátorrendszer olyan szondákat alkalmaz, melyeket közvetlenül a folyamatáramlásba lehet helyezni, igy nincs szükség a részáram-mintázásra. Az ausztráliai üzemek és üzemeltetési tapasztalatai azt mutatják, hogy a radioizotópos müszerek, megfelelő üzemi feltételek között, gazdaságosak és megbizhatóak, ezért az üzemi ellenőrző rendszer részeként még több merülő szondás radioizotópos vagy röntgensugaras mérőkészüléket helyeznek üzembe. A müködő mérőrendszereknél az alap mérési adatokat kis digitális számitógépbe táplálják be, amely kiszámitja a fém koncentrációját, és ellenőrzi, hogy a minta teljesiti-e a követelményeket, a kontrollja azonban a vizsgált elem koncentrációjának manuális meghatározása alapján történik. A végső cél azonban,a nagyobb üzemekben, a folyamatra kapcsolt analizis párositása számitógéppel, amely az automatikus üzemirányitás szükséges funkcióit látja el.

Mivel a meddők vagy maradványok az extrakciós hatásfok legérzékenyebb indikátorai, a folyamatos monitorokat általában először a meddő áramlásoknál szerelik fel. Cameron és Papez [1] /Anglia/ néhány on-line módszert ir le a meddő analizisre, melyek radioizotópos röntgenfluoreszcencia technikát alkalmaznak. Watt, Fookes és Gravitis [11] /Ausztrália/ a kis koncentrációju réz, cink, ón és ólom meddőben lévő koncentrációjának folyamatra kapcsolt meghatározására alkalmazott radioizotópos röntgentechnikát ismertette részletesen, és megmagyarázta a különleges gerjesztési mód választásának okait, az analitikai követelmények mellett.

Az ércek uszóképessége igen fontos tényező flotálással történő dusitásuknál. Cesareo, Frazzoli és Beltrano [12] /Olaszország/ az ásványok uszóképességének tanulmányozásával foglalkozott. A kisérleteket vizsgáló cellában végezték, ahol radioizotópos XRF mérőt alkalmaztak on-line módon a fémkoncentrációk meghatározására. Az eredményeket a hematitflotációra adták meg, különféle apritási jellemzőknél.

Az ércfeldolgozási eljárások, például a flotációs folyamat, vizsgálatára szolgáló dinamikus analitikai módszerek fejlesztésében a radioizotópos nyomjelzéstechnika igen hasznosnak bizonyult, azonban a makrorészecskéjü anyagrendszerek a nyomjelző vizsgálatokkal szemben speciális követelményeket támasztanak. Niemi [13] /Finnország/ konkrét példákon ismertette a vizsgálatok előkészitésére és végrehajtására alkalmazott eljárásokat.

OLVASZTÁS, TISZTÍTÁS, ÖNTÉS ÉS ÖTVÖZÉSI MŰVELETEK

Nem vastartalmú fémek gyártása

Kato, Hirayama és mások [4] széleskörü ismertetést adtak a radioizotópok alkalmazásáról a japán aluminiumiparban. A timföldet a bauxitból Bayer-eljárással vonják ki, és a folyamat elemzésére nyomjelzéstechnikát alkalmaznak. Ilyen vizsgálatokra kerül sor pl. a keverési sajátságok tanulmányozásakor, az anyagok tartózkodási idejének és áramlási viszonyainak meghatározásakor is. A redukciós eljárásnál, ahol a fém aluminiumot a kriolit-aluminium fürdő elektrolizisébőL /kb. looo C^{O}-on/ állitják elő, a redukciós cellákban lévő folyékony fázisu aluminium fém mennyiségének pontos meghatározását végzik izotóphigitásos eljárással. Ez lehetővé teszi a cellák tényleges átlaghatásfokának meghatározását. Vizsgálták az elektrolitfürdő behatolását a szénkatódba ^{24}Na nyomjelzővel, amelyet a fürdő alkotói közé injektálnak, majd autoradiográfiai uton és elektron-mikroszondával elemzik a szénkatódból kivágott mintákat. A jelenlegi irányzat az, hogy a redukciós cellákat megnövelik, igy a mágneses erőtérnek az aluminium áramlására gyakorolt befolyása fokozottabban érvényesül. A nyomjelzéstechnikai módszereket kiterjedten kivánják alkalmazni.

Az oxigéntartalom rutin meghatározása aluminiumban és ötvözeteiben a gyártás különböző fokozatainál gyorsan elvégezhető gyorsneutron-aktivációs analizissel. Mukai, Takano és Takada [14] /Japán/ ismertette a Cockcroft--Walton tipusu neutrongenerátor használatát ilyen célokra. Ők is kimutatták, hogy ugyanazt a készüléket lehet használni a fluor, aluminium, nátrium, szilicium meghatározására az /n,p/ /n,2n/ és /n,α/ magreakciókat alkalmazva, és igy a fluorid alapösszetételének elemzésére is.

Kuoppamäki és Kuusi [15] /Finnország/ az olvasztási folyamat tanulmányozásánál az aktivált betétanyagok nyomjelzőként való használatát ismertették, és példaként leirták egy ferrokróm olvasztó folyamatban végzett kisérletünket.

Acélgyártás

A nyomjelzéstechnika láthatóan ugy tartja fenn magát, hogy lehetőséget biztosit a folyamatanalizis számára, gyakran uj eljárások és berendezések fejlesztésével összekapcsolva. Michalik és mások [16] /Lengyelország/ nyersanyagok keverésénél homogenitási vizsgálatot végeztek nyomjelzéstechnikai módszerekkel, porkohászati üzemekben, valamint kémiai egyensuly-mérleg meghatározását metallurgiai üzemekben. Lindskog [17] /Svédország/ ^{31}S dezoxidálószert használt a keveredő acélfürdő dezoxidációs mechanizmusának tanulmányozására, és arra a következtetésre jutott, hogy a dezoxidációs termék főleg adszorpcióval különül el az olvasztótégely falán is. Ez a felismerés a dezoxidációs termék jelenlegi eltávolitási módjának megváltoztatásához vezethet. Az acélgyártás ujonnan fejlesztett WORCRA folyamatában az acél és a salak gravitációs ellenáramu áramlásban mozognak. Az anyagok folyamatos mozgását ebben a folyamatban sok kutató vizsgálta radioaktiv nyomjelzőkkel. Eredményeiket Engh /Norvégia/, Hansson és Ljuggren [18] /Svédország/ összegezték, akik szintén javasoltak módszert a kisérleti adatok kiértékelésére és a WORCRA finomitási diszperziós model határeseteinek meghatározására.

Az acél folyamatos öntésénél Siewierski és mások [19] /Lengyelország/ a folyamat optimalizálásával és a tömbök felületi minőségének javitásával kapcsolatban ismertettek nyomjelzéstechnikai vizsgálatokat, mig az öntecsek minőségi ellenőrzésének radioizotópos müszeres módszeréről Valuev és társai [20] /Szovjetunió/ számoltak be.

ACÉL- ÉS FÉMALAPANYAGOK VÉGTERMÉKEINEK GYÁRTÁSA

Ugy tünik, hogy az on-line radioizotópos XRF-analizátoroknak a bevonatos szalagok gyártásánál van a legjelentősebb kereskedelmi sikerük. A legáltalánosabb acélbevonó fémek, a cink és az ón nagy költségei a bevonási müveletek pontosabb mérését és ellenőrzését igénylik, különösen a nagy volumenü termelésnél. A modern on-line bevonatsuly- vagy bevonatvastagság-mérők, radioizotópos XRF-technikát alkalmazva, biztositani tudják azt a pontosságot és megbizhatóságot, amely a loo%-os bevonathoz szükséges. A mérési eszközök, rend-

szerint kis számitógép közbeiktatásával, kiterjeszthetők nagysebességü bevonatgyártó vonalak számára ugy, hogy az irányitási feladatok bizonyos részét a gép lássa el, ugyanakkor tömör terméknyilvántartást is végezzen. Donhoffer és Beswick [21] /Ausztria/ folyamati változókat és irányitási követelményeket ismertetett az acélnak cinkkel, aluminiummal és ónnal történő bevonásánál, majd leirta az adatfeldolgozás technikáját és az alkalmazott hardwaret. Végeredményként azt a következtetést vonta le, hogy zárt ciklusu irányitási rendszer használata nemcsak egységesebb terméket eredményez, de jelentős gazdasági hasznot is hoz.

Miyagawa [23] /Japán/ beszámolt arról, hogy az egyik japán acélgyártó vállalatnál több, mint 29o radioizotópos és röntgensugaras mérőhelyet alkalmaznak. Ezeket a mérőket az acélgyártásban számos helyen alkalmazzák a durva lemezhengerlésnél, a meleg és hideg szalaghengerlésnél és a bevonó hengereknél. Különösen érdekesek a társaság által kifejlesztett radioizotópos on-line mérők, amelyek három irányban, szimultán mérik a hengerelt I szelvényü tartók talpának és gerincének vastagságát.

A gerjesztési energia szelekciójának különleges fontossága van a nem-diszperz XRF spektrométernél. Egyes radioizotópok különlegesen tiszta monokromatikus sugárzást bocsátanak ki az XRF gerjesztéshez alkalmas energiatartományban. A γ-sugárzással gerjesztett röntgenforrások, mint amilyeneket Watt, Fookes és Gravitis [11] /Ausztrália/ ir le, a gyakorlatban csak kis intenzitásu monokromatikus röntgensugarakat tudnak kelteni. Jelentős eredmény a kis röntgencsövön alapuló kvázi-monokromatikus sugárforrás, amelyet Clayton és Packer [23] /Anglia/ irtak le. Az uj berendezés olyan energiaszelektáló rendszert tartalmaz, amely bizonyos számu elem számára lehetővé teszi az optimális gerjesztő energia kiválasztását. A kimenő jel intenzitása lényegesen nagyobb, mint amit a γ-sugarakkal gerjesztett forrásokból lehet kapni, igy jobban megfelel a rövid mérési időt igénylő alkalmazásoknál. Több példát hoztak fel az ötvözetanalizisre, valamint a króm- és ónbevonatok meghatározására az acél felületén. A berendezést on-line rendszerben még nem próbálták ki, de nem kétséges, hogy erre is rövidesen sor kerül.

A nyomjelzéstechnika uj alkalmazási területet talált az acél és fém alapanyagu végtermékek gyártásánál, más olyan analitikai eljárásokkal kombinálva, mint az autoradiográfia, elektrondiffrakció és röntgen- vagy elektron-mikroszondás analizis. Iijima [24] /Japán/ ^{51}Cr és ^{35}S izotópot használt nyomjelzőként, ónmentes acéllemez védőbevonat kialakulásának tanulmányozására. Sikerült tisztáznia a film kialakulását befolyásoló gyártási paramétereket, és megerősitenie a felületi film kettősréteg-szerkezetét. Az ömlesztő hegesztés heterogenitásával összefüggő problémákat Hammond, Slaughter és Gurtner [25]

/USA/ vizsgálta ^{63}Ni-lel jelzett töltő fémet használva. A módszernek az a lényege, hogy kis aktivitásu, kis energiáju, β-sugarakat emittáló izotópokat ad a töltő huzalokhoz. Egyéb kisérleti részleteket és eredményeket közölnek a rozsdamentes acélok és más nagy nikkel tartalmu ötvözetek hegesztéséről.

FEJLESZTÉSI ÉS KUTATÁSI ALKALMAZÁSOK

Igen sok olyan módszert vizsgáltak a gyártási folyamatokban való gyakorlati alkalmazásuk szempontjából, amely a nukleáris kutatásban már jól ismert volt, de az iparban még nem. Sowerby és Ellis [26] /Ausztrália/ γ-sugár rezonanciaszóráson alapuló eljárást ismertettek, amelyet sikeresen próbáltak ki bizonyos elemek on-line meghatározásában, tömeges méretekben. A rezonanciaszórás nagyon alkalmas a kivánt elem meghatározására, a pontosan meghatározott energiáju beeső sugárral szemben támasztott követelmények azonban jelenleg csak a gázizotópos forrás használatával elégithetők ki, amely számos alkalmazásnál problémát okozhat. Alkalmas gáz alaku sugárforrásokat fejlesztettek ki, számos elem /mint a réz, nikkel, titán és arzén/ szempontjából kedvező rezonancia-hatáskeresztmetszettel. A kutatások avval zárultak, hogy a módszer jól alkalmazható a szállitó szalagon lévő érc, különösen réz és nikkel elemzésére.

De Meester és munkatársai [27] /Belgium/ a fémáramlás jelenségét vizsgálták hengerlésnél, összetett fémek esetében, röntgen- és γ-letapogatással, valamint más módszerekkel, melyeket normál körülmények között is alkalmaznak az un. "képkeret" tipusu üzemanyag-elemek minőségellenőrzésénél. E munkára alapozva de Meester elmondta a szendvics lemezek hengerlésével kapcsolatos feltevését, és ismertette az üzemanyag-elemek roncsolásmentes vizsgálatának jól bevált eszközeit a fémszendvics lemezek és extrudált csövek gyártásának minőségellenőrzésénél.

Mier és mások [28] /NSZK/ a metallurgiai termékek radiogén ^{187}Os tartalmát tanulmányozták. Kimutatták, hogy a természetes szennyezésnél sokkal nagyobb ^{187}Os-tartalom arra utal, hogy a termékek rhéniumtartalmu ércekből származnak. Ez arra ösztönöz, hogy a módszert a rhénium kimutatására alkalmazzák, hogy ezzel ezt a ritka és értékes fémet a nagyolvasztó hulladékaiból, pl. üzemanyag-füstökből és más metallurgiai melléktermékekből ki lehessen nyerni. A tanulmány példát is ad, miként használjanak kis mennyiségü radiogén és természetes radionuklidot a dusitási mechanizmusok vizsgálatára az ipari folyamatokban.

Kato, Inoue és Sato [29] /Japán/ uj mikro-autoradiográfiás módszert ismertetett, mely az Auger-elektronok használatán alapul. A módszert ők fejlesztették ki és alkalmazták az aluminium szerkezete és a lyukkorrózió tanulmányozására. Ismertették a módszert, a minták előkészitését, a kisérleti eljárásokat és az eredményeket. A japán aluminiumipar a nyomjelzéstechnikát kiterjedten használja, mikro-autoradiográfiával vagy más analitikai eszkö-

zökkel kombinálva, az aluminium és ötvözetei minőségének kutatásában. A legtöbb munka a szerkezetvizsgálattal és a felületi jelenségek elemzésével, valamint a diffuziós és disztribuciós együtthatók mérésével foglalkozott. Kato, Hirayama és mások [4] példákat és hivatkozásokat ismertetnek szemléjükben.

A szilárdtestdetektorok a nagy felbontóképességü γ- és röntgenspektrometria számára a legtöbb kutatólaboratóriumnak már szinte természetes eszköze szerte a világon. Nem látszik azonban nyilvánvalónak, hogy az ipar is teljesen felkészült lenne már ezeknek a müszereknek rutin üzemi alkalmazására. Langheinrich, Forster és Linn [30] /USA/ számolt be arról, hogy az energiaszórási röntgen /EDX/-analizátor, mely szilárdtestdetektorokon alapszik, már betört az ipar egyes területeire. A lehetőségek vizsgálatán, a kutatási és fejlesztési alkalmazásokon kivül, ezeket már folyamat- és minőségellenőrzés céljaira is bevezették a gyártó üzemekben. Példákat soroltak fel az egyedi alkalmazásokra, különös tekintettel az ércfeldolgozásra. Szobahőfokon üzemelő félvezető detektorokkal és hütési technológiával összefüggő fejlesztések is szóba kerültek.

A magfizikaikutatási eredmények közül más modern módszerek is utat találtak a metallurgiai és más ipari vonatkozásu kutatásokhoz.

Neutronok, γ-fotonok és nehéz töltött részecskék által indukált prompt magreakciókon és atomi reakciókon alapuló analitikai módszereket Deconninck és Demortier [31] /Belgium/, Darras, Engelmann és May [32] /Franciaország/, valamint McCoy, Duggan, Robinson és Cipolla [33] /USA/ ismertetett. McCoy és társai a protonnal és α-részecskével indukált röntgenemissziós eljárás felületi nyomszennyeződés kutatására való alkalmazásainak lehetőségeit ismertették, mig a másik két csoport a metallurgiában jobban elterjedt módszereket vitatott meg. A Mössbauer-módszer alkalmazását és lehetőségét a metallurgiában s a mérnöki gyakorlatban Ron [34] /Izrael/ ismertette részletesen. Elemezte a módszert, mind az áthatoló, mind a visszaszóró geometriákban, és kimutatta, hogy az utóbbival a Mössbauer-spektrometria jelentős roncsolásnélküli vizsgálattá vált. Ismertette geometriákra vonatkozó vizsgálatait és legutóbbi tanulmányát a rézben kivált metastabil gamma vas képlékeny alakitással történő szilárdoldásáról [35].

A szimpózium anyaga /A nukleáris technika alkalmazása az acél- és fémalapanyag-termelésben/ a közelmultban jelent meg a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség kiadásában: Nuclear Techniques in the Basic Metal Industries, Proc. Symp. Helsinki, 31 July - 4 August, 1973, IAEA, Vienna, 1973. Az irodalmi hivatkozásoknál e kiadvány oldalszámait adtuk meg.

IRODALOM

1. *K. Papez, J.F. Cameron,* Applications of nondispersive X-ray fluorescence analysers in the basic metals industry /IAEA-SM-159/16/ 21
2. *T.B. Pierce,* Some uses of neutrons from non-reactor sources for the examination of metals and allied materials /IAEA-SM-159/17/ 49
3. *A.I. Lundan, O.P. Mattila,* Use of radioisotope neutron activation and X-ray fluorescence analysers in process control /IAEA-SM-159/3/ 3
4. *M. Kato, T. Hirayama, K. Nishimura, I. Tomohiro, H. Watanabe, K. Tsurumaki,* Application of radioisotopes in the aluminium industry in Japan /IAEA-SM-159/9/ 37
5. *I.S. Boyce, J.F. Cameron, D. Piper,* Nucleonic conveyor-belt weighers for the basic metals industry /IAEA-SM-159/18/ 155
6. *A.C. Hold, D.W. Morgan, K.F. Williams,* Application of gamma-ray absorption to the determination of flow of materials on conveyor systems /IAEA-SM-159/19/ 165
7. *K. Papez, J.F. Cameron, B. Machaj,* On-line neutron moisture gauges in the steel industry /IAEA-SM-159/2o/ 183
8. *E. Frevert, G. Stehno,* Moisture gauging of sinter ores on conveyor belts: operating experience with a system for continuous, non-contacting measurement independent of material mixture and its layer thickness /IAEA-SM-159/29/ 193
9. *F. Grieser, R. Klein,* Nuclear moisture-measurement and a new method of calibration /IAEA-SM-159/6/ 73
10. *J.S. Watt, W.J. Howarth,* Mineral processing methods and on-stream analysis in Australian mineral processing plants /Invited Review Paper, IAEA-SM-159/1/ 1o5
11. *J.S. Watt, R.A. Fookes, V.L. Gravitis,* Radioisotope X-ray techniques for the on-stream determination of low concentrations of copper, zinc, tin and lead in mineral slurries /IAEA-SM-159/2/ 141
12. *R. Cesareo, F.V. Frazzoli, Maria G. Beltrani,* Application of radio-isotope X-ray fluorescence to the study of mineral floatability /IAEA--SM-159/26/ 119
13. *A. Niemi,* Tracer testing of particulate matter systems for their dynamics /IAEA-SM-159/3/ 131
14. *K. Mukai, K. Takano, K. Takada,* Utilization of fast-neutron activation analysis in the aluminium industry /IAEA-SM-159/1O/ 63
15. *R. Kuoppamäki, J. Kuusi, S. Blomqvist,* Use of activated process materials as tracers in smelter process studies /IAEA-SM-159/4/ 227
16. *J.S. Michalik, Z. Bazaniak, J. Palige,* Tracer methods used in the determination of raw-materials mixing homogeneity in iron sintering plants and of chemical elements balance in metallurgical processes /IAEA-SM-159/15/ 2o5

17. *N. Lindskog,* Study of the deoxidation mechanisms in a stirred steelbath using radioactive isotopes /IAEA-SM-159/28/ 221
18. *T.A. Engh, L. Hansson, K. Ljunggren,* Determination of flow characteristics for a continuous slagmetal reactor using measurements of residence-time distribution and concentration gradient /IAEA-SM-159/31/ 251
19. *J. Siewierski, H. Kolaski, H. Firganek, J. Labus, E. Wieczorek,* Radioisotope investigations of the continuous casting of steel /IAEA-SM-159/14/ 237
20. Н.П. Валуев, В.Н. Латышев, В.В. Лындин, Радиометрический метод контроля качества слитка при непрерывной разливке кипящей стали /IAEA-SM-159/36/ 265
21. *D.K. Donhoffer, C.K. Beswick,* Data processing and control systems in metal coating operations /IAEA-SM-159/30/ 299
22. *K. Miyagawa,* Application of measurement systems using radioisotopes in the Nippon Steel Corporation /IAEA-SM-159/11/ 287
23. *C.G. Clayton, T.W. Packer, J.C. Fisher,* Primary energy selection in non-dispersive X-ray fluorescence spectrometry for alloy analysis and coating thickness measurement /IAEA-SM-159/25/ 319
24. *H. Iijima,* Study of the surface film of tin-free steel sheet by using the radioisotope tracer technique /IAEA-SM-159/12/ 355
25. *J.P. Hammond, G.M. Slaughter, F.B. Gurtner,* Heterogeneity of fusion welds determined by use of ^{63}Ni-tagged filler metal /IAEA-SM-159/22/ 369
26. *B.D. Sowerby, W.K. Ellis,* Industrial on-stream analysis using gamma-ray resonance scattering /IAEA-SM-159/24/ 479
27. *P.J.A. de Meester,* Quality control of rolled sandwich plates and co-extruded tubes /IAEA-SM-159/35/ 405
28. *H. Meier, E. Unger, W. Albrecht, D. Bösche, G. Zeitler, W. Hecker, P. Menge, E. Zimmerhackl,* Radiogenic ^{187}Os in metallurgical products as rhenium indicator /IAEA-SM-159/7/ 611
29. *M. Kato, T. Inoue, O. Sato,* New microautoradiography using Auger electrons in the study of the structure and pitting corrosion of aluminium /IAEA-SM-159/13/ 541
30. *A.P. Langheinrich, J.W. Forster, T.A. Linn, Jr.,* Current status and potential of solid-state detectors in industrial and field applications /Invited Review Paper, IAEA-SM-159/21/ 420
31. *G. Deconninck, G. Demortier,* Dosage d'échantillons métalliques par réactions nucléaires et atomiques promptes /IAEA-SM-159/27/ 573
32. *R. Darras, C. Engelmann, S. May,* Etude et applications métallurgiques de l'analyse par activation /IAEA-SM-159/34/ 557
33. *J.D. McCoy, J.L. Duggan, E.L. Robinson,* Proton and alpha particle induced X-ray emission as a proposed surface trace analysis tool /IAEA-SM-159/23/ 591

34. *M. Ron*, Applications and potential of the Mössbauer method as an investigatory tool in metallurgy and materials engineering /Invited Review Paper, IAEA-SM-159/32/ 493
35. *M. Ron*, A Mössbauer study of the dissolution, by plastic deformation, of metastable gamma-iron precipitates in copper /IAEA-SM-159/8/ 531

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/512-520

BIOLÓGIAI MINTÁK PREPARATIV HIBAFORRÁSAI FOLYADÉK-SZCINTILLÁCIÓS MÉRÉSEKNÉL

Lendvay J.*, Pertik B-né**, J. Nagy É.**

*Budapest Fővárosi Közegészségügyi Járványügyi Állomás

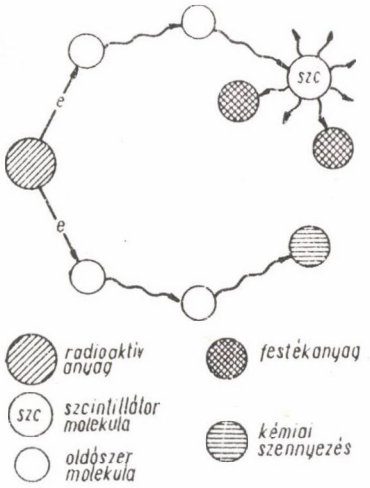
**MTA Orvos-Radiológiai Akadémiai Tanszéki Kutatócsoport, Budapest

A szín- és kémiai kioltást, valamint a kémiai lumineszcenciát csökkentő tényezők vizsgálata

Препарационные причины ошибок при измерении биологических проб с помощью жидких сцинтилляторов
Лендваи, Я., Пертик, Б.нэ, Й.Надь, Э.
Изучение факторов, способствующих снижение цветного и химического поглощений, а также химической люминесценции

Preparative Error Sources in Liquid Scintillation Measurement of Biological Samples
Lendvay, J., Mrs. Petrik, B., J.Nagy, É.
Investigations on factors, lowering colour and chemical extinction, and chemical luminescence, resp.

Mint ismeretes, a folyadékszcintillációs minták *kioltása* /quench/ olyan - a szcintillációs rendszerben lejátszódó - különféle folyamatok következménye, melyek a számláló oldat teljesitményét lerontják, azaz a számlálási hatásfokot negativ irányban befolyásolják. A *szinkioltás* oka a keletkezett fény abszorpciója a szines anyagban, a *kémiai kioltást* viszont olyan kémiai szerkezetü anyagok jelenlétével magyarázhatjuk, melyek megakadályozzák a radioaktiv anyag és a szcintillátor molekula közötti energiatovábbitást /1. ábra/.



1. ábra

A szin- és kémiai kioltást befolyásoló anyagok

E két folyamat egymástól igen különböző, hatásuk azonban azonos, s a mérések során abban mutatkozik meg, hogy nagyobb energiáju β-sugárzók esetében az az adott energiaspektrum meghatározott irányban eltolódik.

Tekintve, hogy a fényimpulzusok csökkennek, a spektrum olyan formát ölt, mintha kisebb energiáju β-sugárzóval dolgoznánk. Tricium esetében, amikor egyébként is csak néhány fotont tudunk mérni az egyes bomlásokból, a kioltás következményeként a minta aktivitását esetleg egyáltalán nem tudjuk meghatározni. Kettősen jelzett mintákkal az erős kioltás lerontja a két energiaspektrum elválaszthatóságát.

Már az elmondottakból is nyilvánvaló, hogy a szcintillációs méréseknél lehetőség szerint olyan preparativ eljárást kell választanunk, ahol kioltással nem kell számolni. Ha ez nem kivitelezhető, akkor minden egyes méréssorozatnál pontosan meg kell határoznunk és számitásba kell vennünk a kioltás effektusát [2].

A folyadékszcintillációs minták számlálásakor a kioltás korrekciójára több eljárás ismeretes /belső standard, csatornahányados, külső standard módszerek/ [6]. Az automatikus külső standardizációval és számitóegységgel ellátott többcsatornás spektrométerek a kioltatlan mintáktól a gyakorlatilag teljes kioltást mutató mintákig terjedő sorozat kioltási korrekciójára biztositanak gyors lehetőséget. Miután a mintakészitési módszereket és a szcintillációs rendszer komponenseinek kiválasztását leggyakrabban a minta fizikai kémiai tulajdonságai határozzák meg, és nem a mérendő radioizotóp, a mintakészitést végző laboratórium jogosan igényelheti, hogy megtudja, a mért összes kioltásban mennyire játszik szerepet a minta elszineződése és mennyire az esetleges kémiai szennyezés.

A leggyakoribb kémiai kioltó anyag a mérőoldatban oldott oxigén, melyet viszonylag egyszerü módszerekkel /semleges gázzal való átáramoltatás, ultrahangos kezelés/ ki tudunk küszöbölni. Természetesen a viz is - bár enyhe - kioltó ágens. Az elszineződésből származó szinkioltás /amely pl. vér vagy egyéb szövetminták roncsolása során keletkezik/, általában minimális mennyiségü H_2O_2 hozzáadásával kiküszöbölhető. A gyakorlatban hasonlóan jól ismert,

hogy nem tul intenziv szineződés esetén a szcintillációs koktél mennyiségének növelésével csökkenthetjük a kioltó szinanyag koncentrációját az oldatban. Az ily módon szintelenitett mintákat azután természetesen közel ugyanolyan hatásfokkal mérjük szinkioltás szempontjából, mint az eredeti nem quenchelő mintákat.

Hyamin lo-X fehérjékkel való reakciója során regisztrálta Herberg [5] elsőizben - több, mint lo évvel ezelőtt - a szcintillátoroldatokban keletkező kémiai lumineszcencia /KL/ jelenségét. Feltünt ugyanis, hogy ha a biológiai anyagot erős savas vagy szervetlen bázisokban oldják, rendkivül nagy a háttérszint, ugyanakkor a mintából származó számlálási sebesség kicsiny. Ezek a szimptómák legkirivóbbak a mérés kezdetekor, majd az idővel exponenciálisan csökkennek - néha 3o percen belül több nagyságrenddel; de ennek ellenére még több óra után is a háttérnél lényegesen nagyobb értéket adhatnak.

A vizsgálatok során kiderült, hogy a KL szobahőmérsékleten erőteljesebb, s intenzitása egyenesen arányos az oldatban jelenlévő peroxidok, szekunder szcintillátorok, valamint, dioxános koktél esetében, a naftalin koncentrációjával. A KL fizikokémiai természetét vizsgálva ugy tünt, hogy a rendszerben jelenlévő peroxidokból felszabaduló molekuláris oxigén - különösen felületaktiv poliglikoléterek, mint pl. a dioxán jelenlétében - hosszu élettartamu KL-t eredményezhet.[4]

Hogy a fehérjék, ill. a biológiai anyagok még ezen felül milyen reakciókban vesznek részt, ugyancsak nem tisztázott.

Az elmondottakból tehát következik, hogy amikor a mintákat előkészitjük folyadékszcintillációs mérésekhez, és a hidrolizált szerv, szervrészlet szinkioltását peroxidok hozzáadásával kompenzálni igyekszünk, a szinkioltás kiiktatásával egyidejüleg olyan KL keletkezik a koktélban, ami nemcsak órák, de sokszor hetek multán sem cseng le, és a mérési eredményeket teljesen meghamisithatja.

Az elmondottakat magunk is bármikor könnyen reprodukálhatjuk. Ha pl. Hyaminhoz kis mennyiségü H_2O_2-t adunk, majd a küvettát feltöltjük dioxán vagy toluol alapu szcintillátor koktéllal, oldatunk fényemissziója jelentősen megnő. Ha Hyaminhoz dioxán alapu koktélt adunk, és a hozzávitt naftalin mennyiségét változtatjuk, a KL jelensége a naftalin koncentrációjával arányosan nő. Annak ellenére, hogy a naftalin és Hyamin keveréke önmagában nem emittál fényt, a dioxánban oldott naftalin mégis növeli a KL-t. Ebből esetleg arra lehetne következtetni [3], hogy a naftalin ugyan nem reagál Hyaminnal, de minden bizonnyal a dioxánt transzparensebbé teszi, és ilyen esetben a fotomultiplier több impulzust regisztrál, "lát", mint naftalin nélkül.

Bransome még 197o-es publikációjában is terra incognita-nak jelöli a KL jelenségét, mert mai napig sem sikerült tisztázni, hogy a különféle mérési feltételek mellett milyen mechanizmus utján jön létre a különböző foku KL. A vélemények látszólag megegyeznek abban, miszerint a lágy β-sugárzók és a

szcintillációs rendszer kölcsönhatásaképpen szinglet oxigénrendszerek keletkeznek. Ennek a folyamatnak, legalábbis részben, az a feltétele, hogy a koktél vizes komponenseiben peroxidok és lugos vagy savas pH szerepeljenek.

Végül is a gyakorlatban nem annyira annak van jelentősége, hogy ismerjük-e ennek a jelenségnek a fizikokémiai természetét, hanem, hogy számoljunk előfordulásával, és ismerjük azokat az előfeltételeket, amelyek mellett ezek kiküszöbölhetők. A kérdés pillanatnyi állása mellett az alábbi tényezők segitik elő a KL keletkezését:

1. molekuláris oxigén, ill.
2. peroxidok jelenléte a mintákban,
3. valamely folyamatban lévő, be nem fejezett aktiv kémiai reakció,
4. lugos vagy savas pH a vizes fázisban /különösen, ha fenolszármazékokkal dolgozunk/.

Természetesen a beavatkozási lehetőségek egész sora ismert, melyekkel a fentiek kiküszöbölhetők. Hogy csak néhányat emlitsünk:

1. teljesen eliminálódnak a problémák, ha a szervmintákat H_2O és CO_2-vé égetjük el, vagy
2. ha nitrogén- vagy argon-átöblitést alkalmazunk;
3. a peroxidok lebomlását kataláz hozzáadásával elősegithetjük;
4. gondosan ügyelünk arra, hogy az oldószerek ne legyenek fenollal szennyezve;
5. ha hidrolizáljuk a szervrészleteket, meg kell bizonyosodnunk arról, hogy a hidrolizis folyamata befejeződött;
6. lugos vagy savas minták esetében lehetőség szerint pH = 7-re kell beállitani a mintákat;.
   Ilyenkor természetesen számolnunk kell azzal, hogy a kioltás tovább romlik;
7. a legmegbizhatóbb, de a kutató számára a legkevésbé rokonszenves megoldás, ha hagyjuk lecsengeni a kémiai reakciókat és a KL-t.

Mindenesetre óva kell inteni az érdeklődőket attól, hogy azt higyjék, miszerint kis hőmérsékleten való tárolás önmagában megoldja a KL problémáját. Kétségtelen, hogy bizonyos értelemben csökken a hamis beütések száma, de teljesen nem tünik el. Sőt vannak olyan speciális, lumineszcenciát előidéző reakciók, melyek élettartama kis hőmérsékleten meghosszabbodik.

Mint már korábbi rövid áttekintésünkben [1] rámutattunk, nagyforgalmu laboratóriumokban a perklórsavas hidrolizist alkalmazzák a legnagyobb előszeretettel, gyorsasága és szerény költségkihatása miatt. Az adott feltételeknek megfelelően /^{14}C vagy ^{3}H méréséről van-e szó, a minták fajlagos aktivitása, ill. viztartalma szerint/ toluol vagy dioxán alapu szcintillátor koktélt alkalmaznak.

Toluol alapu összetétel:

5 g PPO
200 mg POPOP
1 l toluol

Dioxán alapu szcintillátor: loo g naftalin
7-lo g PPO
300 mg POPOP
1 l dioxán.

A dioxán alapu szcintillátor koktélnek az a kétségtelen előnye, hogy nagy mennyiségü vizet képes oldatban tartani. Elsősorban azonban olyan számláló berendezések mellett alkalmazzák, ahol a mintát közel szobahőmérsékleten mérik /5°C felett/, ill. a mérőedény a mérés folyamán csak egészen kis időre kerül 0°C körüli hőmérsékletre.

A kioltás /Q/ az impulzusszám csökkenésének relativ értéke, azaz

$$Q = \frac{I_o - I_1}{I_o}$$

ahol I_o = a kioltás nélküli minta impulzusszáma
I = a kioltott minta impulzusszáma
} azonos mérési feltételek mellett,

I_1 természetesen $< I_o$.

A minták kioltása ennek megfelelően 0-tól 1-ig /az ideális, kioltatlantól a gyakorlatilag teljes kioltásig/ terjedhet. A hazánkban forgalomban lévő p.a. vegyszerekből összeállitott dioxán alapu koktél kioltása o,5-o,7 között változik. Az impulzusszámcsökkenést szin /Q_{sz}/ és kémiai kioltás /Q_k/ különkülön, vagy együttesen, egymás mellett okozhatja.

A teljes kioltás - a továbbiakban csak kioltás - e két hatás összege:

$$Q = Q_{sz} + Q_k .$$

A mérés hatásfoka /η/:

$$\eta = 1 - Q ; \quad \eta < 1$$

A minta abszolut aktivitása:

$$I_{Ci} = \frac{1}{1 - Q} \; I_1 .$$

Ha mérendő mintáinknál csak vizzel kell, mint kioltó anyaggal számolni, akkor 15 ml koktél esetében o,5 ml viz a koktél o,66-os kioltását pl. csak o,73-ra rontja. Ez a lo%-os romlás még nem jelentős, és a gyakorlatban ennél nagyobb mennyiségü /közel 3 ml/ vizes mintával is még elvégezhető a mérés.

Biológiai minták perklórsavas metodikával történő feldolgozásánál magunk és mások tapasztalatai szerint mellőzni kell a szekunder szcintillátort /POPOP/, mert az oldat jelentős zöldes-sárgás elszineződését okozza, és ez olyan mértékben rontja a minták kioltását, hogy a mérési eredmények illuzorikussá válnak. Saját gyakorlatunkban feltünt azonban, hogy a kioltás jelentős romlása nem állt arányban a látszólagos elszineződéssel, s ezért ezt a kérdést részletesebben vizsgáltuk.

Elsősorban arra törekedtünk, hogy megbizható módon elkülönitsük a mintában keletkező szinkioltást a kémiai kioltástól, ill. megállapitsuk, hogy egyik és másik faktor milyen százalékban felelős a keletkező kioltásért. Leforrasztott üvegcsőbe /belső standard/ aktiv koktélt tettünk, és a csövet a mérőedény kupakjához rögzitettük. Az üvegcsőből kilépő fényre a szines minta fényabszorpciója hat, igy a koktél kioltása miatt fellépő relativ impulzusszám-csökkenéssel /$R_{Q_{sz}}$ / kell számolni:

$$R_{Q_{sz}} = \frac{I'_o - I'_1}{I_o}$$

ahol I'_o = a szcintillációs koktélba helyezett belső standarddal mért impulzusszám
I'_1 = a mérendő szines mintát és a belső standardot tartalmazó koktél esetén mért impulzusszám
} azonos mérési feltételek mellett

Az igy mért $R_{Q_{sz}}$ érték azt jelenti, hogy a koktélhoz képest a szinhatás további impulzusszám-csökkenést eredményezett.
A szinkioltást a következő összefüggés alapján számolhatjuk ki:

$$Q_{sz} = R_{Q_{sz}} \, /1 - Q_{koktél}/ .$$

A fenti összefüggésből nyilvánvaló, hogy intenziven szines minták számlálásakor is fontos tényező a szcintillációs koktél kioltása. Egy o,66 kioltásu koktélnál /amikor a relativ impulzusszám csökkenése 66%/, a szines minta és belső standarddal mért $R_{Q_{sz}}$ = o,5 azt jelenti, hogy a koktél kioltásához a teljes kioltáshoz hiányzó 34% felének megfelelő, azaz 17%-os szinkioltás adódik.

A minta kioltása - a teljes relativ impulzusszám-csökkenése: o,66 + o,17 = =o,83.

Ha a koktél kioltása o,2, ill. o,5, és a belső standarddal mért $R_{Q_{sz}}$ mindkét esetben o,5, akkor a szinkioltás o,4, ill. o,25. A szines koktél kioltása ennek megfelelően o,6, ill. o,75. Ez a látszólag kis különbség jelentős lehet a kettősen jelzett minták mérésénél, a legkisebb kimutatható aktivitások meghatározásánál. Ha a koktél aktiv mintát tartalmaz, az $R_{Q_{sz}}$ értékét a következőképpen kapjuk:

$$R_{Q_{sz}} = \frac{I'_o - I_q}{I'_o} ,$$

ahol

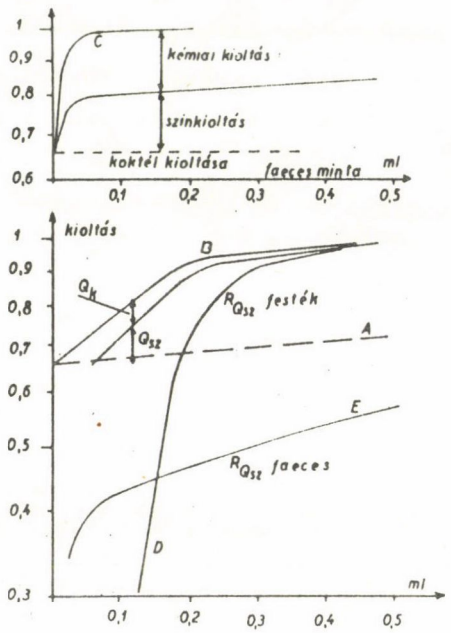
I'_o a koktélba helyezett belső standarddal mért impulzusszám;
$I_q = I''_2 - I'_2$;
I'_2 az aktiv mérendő mintát tartalmazó koktél esetén mért impulzusszám;
I''_2 az aktiv mérendő mintát és a behelyezett belső standardot tartalmazó koktél esetén mért impulzusszám.

A minta abszolut aktivitása, ha csak szinkioltással kell számolni, a következő:

$$I_{Ci} = \frac{1}{1 - Q_{sz}} I_2' .$$

A szinkioltás meghatározásához olyan koncentrációju toluolban oldott tioflavin-S-festéket használtunk, amely o,3 ml mellett gyakorlatilag teljes kioltást eredményezett.

A kémiai szinkioltás méréséhez desztillált vizet használtunk /2. ábra/ /A. görbe/.



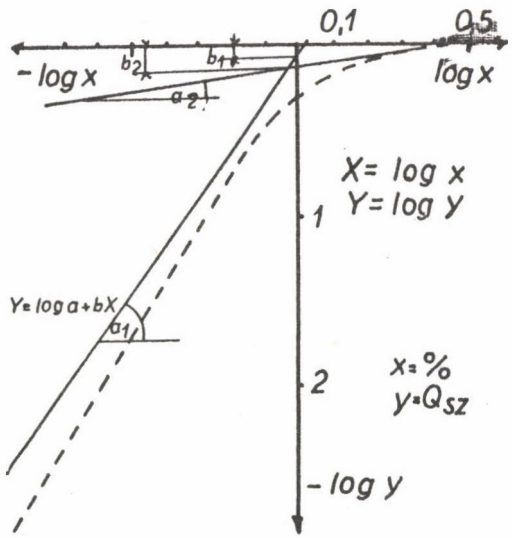
2. ábra

A méréseknél használt minták kioltása /$Q_k = Q - Q_{sz}$/

Biológiai mintaként a legnehezebben kezelhető faeces mintákat használtuk /kb. lo mg száritott faeces +o,2 ml perklórsav +o,1 ml H_2O_2/.

A fent felsorolt három mintából egyenként, nagyon kis lépcsőben, o,1-o,6 ml-t /o,133 koktél térfogat %/, ill. ismert aktivitásu ^{14}C-et tartalmazó oldatból lo mg-ot/ 212 ooo cpm/ vittünk be a koktélba, és ezekből a mintákból határoztuk meg a szin és kémiai kioltás arányát. Mérési eredményeinket 2. ábránk szemlélteti.

Emeljük ki az ábrából a szinkioltást reprezentáló D görbét. A függvényösszehasonlitás elvégzéséhez keressük a függvényt $y = ax^b$ alakban. Linearizáló egyenletei $Y = \log y$ és $X = \log x$ /x a kioltó anyag %-osan, y a szinkioltás/ /lásd a 3. ábrát/.



3. ábra

A festékes minta szinkioltási függvénykapcsolata

Mindkét szakasz linearizáló egyenletét jellemző állandók "a" és "b" megfelelő értékei a kioltó anyagra jellemző számértékek.

A perklórsavval hidrolizált faeces minták már egészen kis mennyiségben is sárgás elszineződést okoznak a koktélban /C. görbe/. A koktél alapanyagában bekövetkező változások már o,o6 ml-nél teljes mértékünek tünnek. Ha tovább növeljük a koktélba vitt biológiai minta mennyiségét, szemmel is ellenőrizhetjük, hogy egy határérték felett a minták sárgás elszineződése a továbbiakban nem fokozódik.

Amennyiben a szervhidrolizátumot semlegesitjük, és ugy visszük a koktélba, a sárgás elszineződés nem következik be, s igy nem kétséges, hogy a szinreakció elsősorban az erősen savas pH következménye. Mint már az előzőekben is rámutattunk, a kioltás lényegesen javul, ha perklórsavas hidrolizis esetén a koktélból a szekunder szcintillátort /POPOP/ elhagyjuk.

A méréseket Packard Tri-Carb folyadékszcintillációs spektrométerrel végeztük /Model 338o/.

Összefoglalva megállapithatjuk, hogy:

a/ 3-4 koktél-térfogat %-nyi viz még nem rontja jelentősen a mérés hatásfokát;

b/ hazai p.a. vegyszerekből összeállitott koktél kioltása nem tul kedvező /kb. Q = o,5/;

c/ jelentős kioltásu, enyhén szines minták esetén általában nem a szinkioltás a meghatározó;

d/ perklórsavas metodika alkalmazása esetén nem a szinkioltás, hanem a kémiai kioltás a felelős a rossz mérési hatásfokért.

Elengedhetetlen, hogy az adott kisérleti feltételekhez alkalmas koktél megválasztásánál ismerjük a várható kémiai és szinkioltás mértékét. Különösen fontos ez triciummal, ill. kettősen jelzett minták esetében, ahol a kimutathatóság /detektálás/ a hatásfok függvénye. Önmagában az összkioltás ismerete

nem nyujt kellő információt ahhoz, hogy az egyes preparativ eljárások során meg tudjuk állapitani, melyik szcintillációs koktélösszetétel biztositja számunkra az optimális mérési feltételeket.

IRODALOM

1. *J. Nagy É., Lendvay J., Szy D.,* Biológiai minták készitése folyadékszcintillációs mérésekhez. Kiséri. Orv. Tud, 24, /1972/ 636
2. *E. Rapkin,* Preparation of Samples for LSC, Labor. Sci., 11, /1967/ 1
3. *W.D. Bransome,* The Current Status of LSC, Grune, Stratton, New York - London, 197o
4. *H.H. Ross, R.E. Yerick,* Quantitative Interpretation of Color Quenching in LS Systems, Anal. Chem. 35, /1963/ 794
5. *J. Herberg,* Backgrounds for LSC of Colored Solutions, Anal. Chem. 32, /196o/ 1468
6. *G.A. Bruno, J.W. Christian,* Correction for Quenching Associated with LSC. Anal. Chem. 33, /1961/ 65o

Beérkezett 1973. május 3-án.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/521-533

A RADIOAKTÍV IZOTÓPOK MŰSZERES ÉS NYOMJELZÉSTECHNIKAI IPARI ALKALMAZÁSAIBÓL SZÁRMAZÓ SUGÁRTERHELÉS

Uchrin Gy.
MTA Izotóp Intézete, Budapest

Az alkalmazások helyzete Magyarországon. A sugárterhelés becslése és adatai.

Радиационная опасность использования в промышленности ядерный приборов и метода меченых атомов
Ухрин, Дь.
Состояние применения в Венгрии. Оценка доз.

Exposure from the Industrial Use of Radioactive Isotopes in Nuclear Instruments and Labelling Techniques
Uchrin, Gy.
Status of industrial use of isotopes in Hungary. Estimations of exposition doses.

BEVEZETÉS

A radioaktiv izotópok sokrétü alkalmazásának egyik fontos területe ipari alkalmazásuk. Az MTA Izotóp Intézete több, mint lo éve végez müszeres alkalmazást zárt sugárforrások felhasználásával, valamint nyomjelzéstechnikai vizsgálatokat.

E két területen szerzett sugárvédelmi tapasztalatok alapul szolgálnak a radioizotópok ezen alkalmazásaiból származó sugárveszély és az egyes személyeket, ill. lakosságot érő sugárterhelés mértékének becslésére.

A lakosságnak az ionizáló sugárzásból származó sugárterhelését /dózisait/ szigoru nemzetközi előirások korlátozzák, ezek ésszerü megtartásához

alapvetően szükséges a sugárterhelés különféle forrásaiból /pl. a radioizotópok ipari alkalmazásából/ származó hányad ismerete. A becslésből kapott adatok tükrében az alkalmazásokra vonatkozó konkrét egészségügyi és biztonságtechnikai előírások helyessége is vizsgálható.

RADIOIZOTÓPOS MŰSZEREK IPARI ALKALMAZÁSA

A radioizotópos ipari műszereket egyre növekvő számban alkalmazzák egyszerű mérőelemként vagy technológiai folyamatok automatikájának érzékelő elemeiként. A felhasznált zárt sugárforrások általában hosszu felezési idejü radioizotópok, a jellemző aktivitástartomány lo-2oo mCi.

Az MTA Izotóp Intézete által az 1961-1971 közötti időszakban végzett műszeres alkalmazás néhány sugárvédelmi szempontból fontos adatát az 1. és 2. táblázat tünteti fel.

1. táblázat

A radioizotópos műszerek ipari alkalmazásának /MTA Izotóp Intézet/ és a radiográfiának /országos/ néhány adata /1961-1971/

műszer típusa	szint-jelző	vastag-ságmérő	sürüség-mérő	darab-számláló	töltés-leszedő	nedvesség-mérő	radiográfia	
							γ-defek-toszkóp	ipari röntgen
darab-szám	132	25	18	12	3	2	5o	3oo
átla-gos aktivi-tás mCi/mü-szer	125	2o	1oo	1o	1oo	2oo	15 ooo	-

2. táblázat

A radioizotópos műszerekhez alkalmazott sugárforrások fajtái és felhasznált összaktivitása /1961-1971/

sugár-forrás	^{6o}Co	^{137}Cs	^{2o4}Tl	^{241}Am-Be	^{9o}Sr	^{85}Kr	^{241}Am	^{239}Pu
össz-aktivitás mCi	752o	11o5o	345	2oo	2oo	12o	49o	6o

Az MTA Izotóp Intézetben jelenleg kb. 3o dolgozó foglalkozik a radioizotópos müszerek ipari alkalmazásával. Ilyen irányu tevékenységet természetesen nemcsaz az MTA Izotóp Intézete folytat, a felszerelt müszerek fajtáját, darabszámát tekintve azonban a táblázat adatai a hazai alkalmazásra jellemzőnek tekinthetők.

A zárt sugárforrások ipari alkalmazásának másik területe a radiográfia. Az ipari radiográfiai vizsgálatokat γ-defektoszkópokkal és főként ipari röntgenberendezésekkel végzik. A radiográfiás készülékeket részben telepitett laboratóriumokban, részben helyszini felvételeknél kiterjedten alkalmazzák, elsősorban acélipari termékek finom- és durvaszerkezeti vizsgálatára.

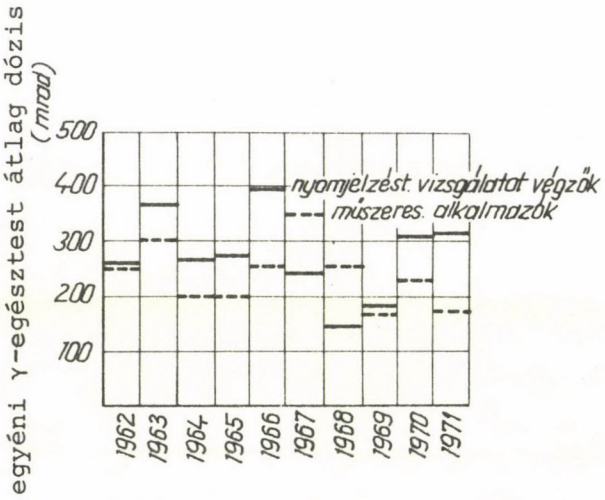
Az ipari radiográfiai célra használt berendezések országos számadatait az 1. táblázat tünteti fel [1].

A SUGÁRVESZÉLY JELLEGE ÉS MÉRTÉKE RADIOIZOTÓPOS MŰSZEREK ALKALMAZÁSÁNÁL

A radioizotópos müszerek zárt sugárforrásait az esetek többségében speciális munkatartóba szerelik. A munkatartó a külső sugárzás dózisszintjét megfelelő mértéküre csökkenti, ezen kivül megakadályozza a radioaktiv anyag szétszóródását /még erőteljes külső behatás esetén is/. Igy üzemszerü használatánál csak a külső sugárzás jelenti a sugárveszélyt. A sérülékeny β- és α-sugárforrásoknál a telepités és üzemeltetés szigorubb feltételei a sugárveszélyt ugyancsak a külső sugárzásra korlátozzák /ez α-sugárzóknál, pl. ^{239}Pu-nál, az esetleges γ-sugárzást jelenti/.

Megjegyzendő, hogy rendellenes esetekben - a sugárforrás nyitottá válásakor, a radioaktiv anyag szétszóródásakor, és fokozottan radiotoxikus izotópok /pl. ^{241}Am, ^{239}Pu/ alkalmazása esetén - nagymértékü inkorporációs veszély léphet fel. E veszély becslése csak statisztikus adatfeldolgozás alapján volna lehetséges, azonban a rendellenes esetek nagyon kis száma miatt ilyen becslés nem végezhető el /intézeti gyakorlatunkban egyetlen eset sem fordult elő/.

Az alkalmazást végzők - foglakozásuk során besugárzásnak kitett dolgozók - személyi dózisterhelését az MTA Izotóp Intézetében alkalmazott módszerrel ellenőrizzük[2]. A személyi γ-dózisok évi megoszlását az 1961-1971 közötti időszakra az 1. ábrán tüntettük fel. A személyi dózisok kicsik, átlaguk a megengedhető maximális évi dózis /MMD/ 5-6%-a. Hasonlóan kicsik voltak a β-sugárzásból származó dózisok is.



1. ábra

Radioizotópok ipari alkalmazását végző dolgozók egésztest-γ-dózisának évi megoszlása 1961-1971 időszakban

Az üzemekbe telepitett *műszerek sugárforrásainak környezetében dolgozók* sugárterhelését a sugárforrás aktivitásának, a munkatartó falvastagságának, anyagának a személyek számának és a forrástól való távolságnak ismeretében becsülhetjük.

A becsléshez a következő adatokat használtuk: legyen a sugárforrást magába foglaló munkatartótól 1 méterre a dózisintenzitás o,5 mR/h, - ez a hazai előirások szerint [3] a maximális érték -, a környezetből figyelembe vett terület lo m sugaru kör, az érintett dolgozók száma 5 és a besugárzási idő 48oo h/a.

A vizsgált terület határán a dózisszint 5 μR/h, közel megegyezik a természetes háttérsugárzás szintjével. Nagyobb terület figyelembevétele nem indokolt, a gyakorlatban előforduló helyiségméretek, továbbá a falak, berendezési tárgyak sugárzást gyengitő hatása miatt. A dózis becslésénél a munkatartótól 1 és lo m sugaru körök által határolt területre az átlagos dózisintenzitást az alábbi módon számoltuk:

$$D_{12} = \frac{D_1}{r_2 - r_1} \int_{r_1}^{r_2} \frac{1}{r^2}\, dr = o,o5 \text{ mR/h}$$

Esetünkben r_1 = 1 m, r_2 = lo m és D_1 = o,5 mR/h volt.

A számitott értékeket a 3. táblázat tünteti fel.

3. táblázat

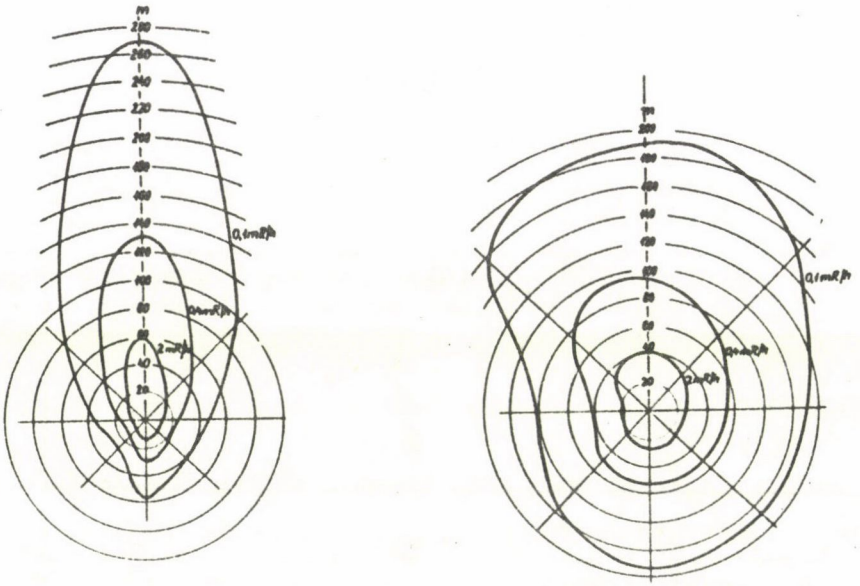
A radioizotópos müszerek és a radiográfia hazai ipari alkalmazásából származó dózisterhelések összefoglaló adatai

	ipari röntgen-berendezés	γ-defek-toszkóp	radioizotópos müszer
darabszám	3oo	5o	3oo
hivatásos alkalmazók száma	6oo	6oo	1oo
dózisintenzitás 1 m-re	2,2 R/h	7,5 R/h	o,5 mR/h
ellenőrzött terület határa, m	3o-75	5o-12o	1
a figyelembe vett sugárzási tér határa a forrástól, m	3o-15o	5o-25o	1o
a lakosság egyes tagjait érő dózisok összege, man-rem/év-készülék	1o	3o	1
a lakosság egyes tagjait érő dózisok összege, man-rem/év	3ooo	15oo	3oo
hivatásos alkalmazók összegzett dózisai, man-rem/év	6oo	6oo	5o
a lakosság egyes tagjait érő és a hivatásosak összegzett dózisai, man-rem/év	545o	545o	545o
a különféle besugárzási csoportba tartozó személyek átlagdózisai, mrad/év	"A" kat. 9oo	"B" kat. 3o	"C" kat. o,55
átlagdózis a megfelelő MMD %-ában	18	2	o,3

Az egy készülékre vonatkozó man rem/év-ben* kifejezett dózisterhelések felső korlátnak tekinthetők.

Az ipari radiográfiai alkalmazásból származó dózisterhelés értékeit az előbbiekhez hasonló módon becsüljük. A radiográfusok összegzett dózisa az MMD 2o%-ának megfelelő személyei dózisterhelések figyelembevételével 6-o man-rem/év.[4] A radiográfiai berendezések környezetterhelés szempontjából vizsgált sugárzási tere a radioizotópos müszerekéhez képest sokkal nagyobb. Ennek szemléltetésére a 2. ábrán egy radiográfiai gyakorlatban általánosan használt "SUPER LILIPUT 2oo" tipusu ipari röntgenberendezés [5] és egy /hazánkban ma még ritkaságszámba menő/ hordozható betatron sugárzási terét tüntettük fel [6].

*A man-rem egy népességcsoport átlagos dózisának és az egyedek számának szorzatát vagy másképpen az egyedi dózisok összegét jelenti.



PMB-6 betatron Super Liliput 200

/ a sugárnyalábban 10 mm vastag vas szórólemez van /

2. ábra

A besugárzási dózisintenzitás eloszlása PMB-6 tipusu hordozható betatronnál és "Super-Liliput 200" tipusu ipari röntgenberendezésnél

A 2 mR/h, ill. o,4 mR/h értékhez tartozó görbék a védett zóna határait jelentik alkalmi, ill. telepitett felvételek esetén.

A környezetterhelés szempontjából vizsgált terület határát a o,1 mR/h dózisszintértékkel jelöltük ki, figyelembevéve, hogy egyrészt az átvilágitásra kerülő tárgy, másrészt az épületek, stb. árnyékolása miatt a gyakorlatban minimálisan lo-szeres sugárzásgyengités lép fel, másrészt, hogy állandó "személy-sürüség" esetén a vizsgált terület növekedésével irreálisan nagynak adódna az érintett személyek száma.

A becsléshez használt átlagértékek: looo üzemóra/év és 5 fő/looo m^2. A különböző tipusu berendezésekre kapott man-rem/év-ben kifejezett dózisterhelési értékeket a 3. táblázat tartalmazza.

A számitások alapján a táblázatban feltüntettük a radioizotópok müszeres és a radiográfiai berendezések alkalmazásából származó összegzett átlagdózisokat a különféle besugárzási kategóriákra, ill. ezek megengedhető maximális dózisainak %-ában is.

NYOMJELZÉSTECHNIKAI VIZSGÁLATOK

Az MTA Izotóp Intézete eddig közel loo nyomjelzéstechnikai vizsgálatot végzett, elsősorban a vegyipari és épitőipari üzemekben /anyagáthaladás, -keveredés, hibahely-meghatározás, , anyagfogyás mérése, stb. céllal/. Ezek a vizsgálatok a nyomjelzéstechnikai alkalmazás széles körét ölelik fel. A kisérletekhez felhasznált radioizotópok körét /nem törekedve teljességre/, valamint néhány egyéb, a sugárveszélyt jellemző adatot a 4. táblázatban tüntettük

fel. Megadtuk a felezési időt /$T_{1/2}$/, a szervezetbe belégzéssel vagy lenyeléssel jutó radioaktiv anyag µCi-ben kifejezett aktivitását, amely az adott kritikus szerv "B" kategóriára vonatkoztatott MMD-nek megfelelő besugárzását eredményezi /Q'/, és az egyszeri jelzésekhez felhasznált összaktivitást /A/.

4. táblázat

Nyomjelzéstechnikai vizsgálathoz használt izotópok köre és az inkorporációs veszélyt jellemző néhány adata

nyomjelző izotóp	^{131}I	^{137}Cs	^{203}Hg	^{65}Zn	^{86}Rb	^{59}Fe	^{60}Co	$^{110}Ag^{m}$	^{140}La	^{24}Na	^{198}Au	^{51}Cr
$T_{1/2}$/nap/	8	$1,1.10^{4}$	47	245	18,6	45,1	$1,9.10^{3}$	270	1,67	0,62	2,7	28
Q'/µCi/	4,9	24,5	43,2	128	138	96	375	570	1000	1150	1500	5350
A/µCi/	$1,8.10^{3}$	1.10^{4}	6.10^{6}	1.10^{5}	1.10^{7}	4.10^{4}	$1,2.10^{6}$	5.10^{4}	3.10^{5}	1.10^{6}	$1,4.10^{6}$	$1,5.10^{7}$
A/Q'/	370	406	$1,4.10^{5}$	780	$7,2.10^{4}$	420	$3,2.10^{3}$	87	300	870	930	2800

Minden ipari nyomjelzéstechnikai vizsgálatot sugárvédelmi szempontból is "megterveztünk", és végrehajtásuk helyszini sugárvédelmi felügyelet, ellenőrzés mellett történt. A sugárvédelmi ellenőrzés a vizsgálatot végző intézeti /és esetenként üzemi/ dolgozók külső és belső személyi dózisterhelésének mérésére és a kisérlet munkaterületének "környezeti" ellenőrzésére terjedt ki. A környezeti ellenőrzés ebben az esetben a felületi és levegőszennyezettség mérésén kivül a jelzett termék/ek/ radioaktiv koncentrációjának meghatározását és a termék utjának nyomonkövetését is jelentette.

A kisérletek sugárvédelmének megfelelő kialakitásához a biztonságot befolyásoló konkrét üzemi feltételeket /pl. porzás mértéke, a vizsgált rendszer zártsága, stb./ előzetesen felmértük, s ezek figyelembevételével határoztuk meg a kisérletek végrehajtásának módját, ill. választottuk meg a védőeszközöket. Egyes kisérleteknél az inkorporáció becsléséhez az üzemben alkalmazott rendszeres toxikológiai ellenőrzés eredményeit is felhasználtuk /pl. higanyinkorporáció becslése klóralkáli elektrolizáló üzemben végzett kisérleteknél/.

A SUGÁRVESZÉLY JELLEGE ÉS MÉRTÉKE AZ IPARI NYOMJELZÉSTECHNIKAI VIZSGÁLATOKNÁL

A nyomjelzéstechnikai kisérletekhez általában kevéssé radiotoxikus, rövid vagy közepes felezési idejü izotópokat alkalmaznak. A szokásos mérés-technika általában kemény γ-sugárzást kibocsátó radioizotópokat kiván, a kisérlet jellegétől függően néhány mCi, esetleg néhány Ci összaktivitással.

Külső sugárterhelésnek elsősorban a jelzőanyaggal közvetlenül müveletet végzők, ritkább esetben a jelzett ipari objektum környezetében lévő dolgozók vannak kitéve. Ez utóbbi esetben a dózisterhelés csak akkor számottevő, ha nagy aktivitásu, nagy γ-dózisállandóju jelzőanyagot használnak, és az expozició ideje hosszu.

Az elvégzett kisérletek között az ilyenek száma csekély volt, és tapasztalataink alapján a környezetben dolgozók dózisterhelése ilyenkor sem érte el az 1 manrem/év értéket kisérletenként, mely az egy radioizotópos müszer folyamatos üzemeltetése esetén kapott maximális érték.

A nyomjelzéstechnikai vizsgálatok egy részénél a sugárzó anyag csak kis mértékben válhat szennyezővé: pl. dróthuzókő kopásának, ill. villamos érintkező anyagfogyásának mérésekor a jelzőanyag felaktivált huzókő, ill. galvanizált érintkező. Ilyen vizsgálatoknál a sugárveszély és a védekezés módja nem sokban tér el a zárt sugárforrások alkalmazásánál meglévőtől.

Az Intézetünkben ipari nyomjelzéstechnikai vizsgálatokat végző dolgozók személyi egésztest-γ-dózisának évi alakulását az 1961-1971 közötti időszakra a 2. ábrán tüntettük fel. [2] A dózisterhelés kicsi, összegezve 3 manrem/év /Intézetünknél lo fő végez nyomjelzéstechnikai vizsgálatokat/. Más intézetek által végzett vizsgálatokat is figyelembevéve a nyomjelzéstechnikai kisérleteknél az alkalmazók és a környezetben dolgozók összegzett személyi dózisa valószinüleg nem haladja meg az 5o manrem/év értéket.

A nyomjelzéstechnikai vizsgálatoknál fellépő inkorporációs veszély becsléséhez W. Rehak [7] módszerét vettük alapul, kissé módositva. A becslési módszert vázlatosan az alábbiakban ismertetjük.

A lehetséges maximális inkorporációs veszély az alábbi összefüggéssel jellemezhető, ha $m \ll M$:

$$P = \frac{m \cdot A}{M \cdot Q'} \quad T_{eff},$$

ahol m - a környezetből a szervezetbe belégzéssel vagy lenyeléssel jutó idegen anyag mennyisége, g/d ,

A - a jelzéshez felhasznált radioizotóp aktivitása, µCi

M - a radioizotóppal jelzett termék mennyisége, g

Q'- a szervezetbe egyszeri belépgzéssel vagy lenyeléssel jutó radioaktiv anyag aktivitása, amely az adott kritikus szerv "B" kategóriára vonatkozó MMD-nek megfelelő besugárzását eredményezi, µCi

a Q' értéket az ICRP Publ. lo [8] adatainak felhasználásával, a szervezetben oldódó radioizotópokra számoltuk;

T_{eff}- az a radioaktiv bomlást is figyelembevevő effektiv idő napokban, amig a jelzett anyag eredeti koncentrációjának megfelelően van az üzemben: $T_{eff} = \frac{1}{\lambda} \; 1-e^{-\lambda t}$.

Az m értéke széles tartományban változik. Aeroszolokra belégzéssel o,l g, de pl. HTO esetén vagy lenyeléssel történő inkorporációnál loo g is lehet [9].

A P-vel kifejezett inkorporáció - rendellenes esettől eltekintve - a lehetséges maximális érték, ezt azonban az un. veszélyességi tényezők /R_i/ csökkenthetik. A veszélyességi tényezők meghatározása többnyire önkényes módon történik.

M. Keller [9], az ISO ajánlására [10] támaszkodva, radioaktiv anyagok kezelésénél az 5. táblázat szerinti veszélyességi tényezők alkalmazását javasolta.

5. táblázat

Veszélyességi tényezők radioizotópok kezelésénél [8]

$$R = R_M \cdot R_O$$

a radioaktiv anyagok fizikai állapota / a müvelet típusa (R_O \ R_M)	szilárd-tartós kis felületi szennyezettség	folyékony oldat, szuszpenzió	szilárd-szóródó szennyezett felület	illékony gáz, gőz aeroszol
	lo^{-3}	lc^{-2}	lo^{-1}	1
nagyon egyszerü /tárolás, szállitás, stb./	lo^{-3}	lo^{-6}	lo^{-5}	lo^{-4}	lo^{-3}
egyszerü, rutin /aktivitásmérés, higitás, stb./	lo^{-2}	lo^{-5}	lo^{-4}	lo^{-3}	lo^{-2}
összetett /átcsomagolás, szétszerelés, stb./	lo^{-1}	lo^{-4}	lo^{-3}	lo^{-2}	lo^{-1}
nagyon összetett /bonyolult, nem rutin müveletek/	1	lo^{-3}	lo^{-2}	lo^{-1}	1

A táblázatban szereplő veszélyességi tényezőkhöz még további, az alkalmazott védekezés hatásosságát - R_s - kifejező faktor járul /légzésvédő használata, szellőzés stb./. Az inkorporáció veszélyét igy a $P.R_o.R_M.R_s$ szorzattal fejezhetjük ki.

A fenti módszerrel becsléseket végeztünk a nyomjelzéstechnikai vizsgálatoknál fellépő inkorporációs veszélyre. Számitásainknál, W. Rehak módszerétől eltérően, a P értékét nem a megengedhető maximális évi inkorporációval /MPAI/, hanem a nyomjelzéstechnikai vizsgálatokhoz jobban alkalmazható fent meghatározott Q' értékkel határoztuk meg.

Az inkorporációs veszély becslését, alkalmazási gyakorlatunkból vett példákkal, a 6. sz. táblázatban mutatjuk be. A becslésnél m értékét loo g-nak választottuk, igy P értéke maximális, aeroszolokra nyilvánvalóan 2-3 nagyságrendi felülbecslés.

A becslések alapján az inkorporációs veszély jelentéktelen, az üzemi dolgozók dózisterhelése egy-egy kisérletnél általában kisebb, mint a megengedhető dózis 1/looo-ed része. Ezt a megállapitást támasztja alá az alkalmazást végző dolgozók rendszeres inkorporációs ellenőrzésének /egésztest-számlálás, esetenkénti exkréciós analizis/ eredménye is. Egyetlen esetben mértünk az alkalmazott mérésmódszerek érzékenységét meghaladó, de jelentéktelen mértékü inkorporációt; az érintett dolgozó gondatlansága miatt loo nCi ^{203}Hg testterhelést mutattunk ki.

A BECSÜLT DÓZISTERHELÉSI ADATOK ÉRTÉKELÉSE

A radioizotópok vizsgált ipari alkalmazásaiból származó foglalkozási és a lakosság egyes tagjait érő dózisterhelési értékek a becslésekhez használt kiindulási adatok megbizhatósága miatt korlátozottak, igy a levonható következtetések többnyire kvalitativ jellegüek.

A radioizotópos müszerek és radiográfiai berendezések ipari alkalmazását végző dolgozók dózisterhelése ellenőrzött, értéke kicsi, a megengedhető évi dózisterhelés 3o%-a. A lakosság dózisterheléséhez - a foglalkozási besugárzásból - az ipari radiográfia kb. lo-szer nagyobb hányaddal járul hozzá, mint a müszeres alkalmazás, a két területen hivatásszerüen dolgozók számarányának és a radiográfusok nagyobb személyi dózisainak megfelelően.

A lakosság egyes tagjait érő dózisterhelés nem elhanyagolható. A méréssel ellenőrzött és a becsült dózisok összege 545o man-rem/év, amely a lakosság /lo^7 fő/ dózisterhelésének csak kis hányadát jelenti; egy főre vonatkoztatva a megengedhető évi 17o mrem dózisterhelés o,3%-a: o,5 mrem. Ez kb. azonos a hazai foglalkozási besugárzások összegével.

6. táblázat

Inkorporációs veszély becslésének számadatai az MTA Izotóp Intézete által végzett néhány nyomjelzéstechnikai vizsgálatnál

kisérlet jellege	alkalmazott radioizotóp	jelzett termék koncentrációja µCi/g	T_{eff} nap	$P=\frac{m.A}{M.Q},T$	Veszélyességi tényezők R_M	R_O	R_s	P.R
higanyveszteség meghatározása klóralkáli-elektrolizisnél	^{203}Hg	4,2* $2,8.10^{-1}$**	15 T^+	$1,5.10^{2}$ $4,2.10^{1}$	1 1	10^{-2} 10^{-2}	10^{-1} 10^{-1}	$1,5.10^{-1}$ $4,2.10^{-2}$
kenőanyag-felvétel vizsgálata drótgyártásnál	^{65}Zn	$1,8.10^{-1}$* 5.10^{-5}**	14 T^+	2.10^{2} $1,4.10^{-2}$	10^{-1} 10^{-3}	10^{-2} 10^{-1}	10^{-2} 1	2.10^{-3} $1,4.10^{-4}$
keverési hatásfok, homogenizálódás mérése szuperfoszfát gyártásánál	^{86}Rb	8.10^{-1}* 3.10^{-2}**	15 T^+	8,7 6.10^{-1}	10^{-1}	1	10^{-2}	$8,7.10^{-3}$ 6.10^{-4}
keverési hatásfok és homogenitás mérése atomizer por gyártásánál	^{140}La	1.10^{-2}	T^+	$2,5.10^{-3}$	10^{-1}	1	10^{-1}	$2,5.10^{-5}$
acélhuzalok káliszappan-bevonatának vizsgálata	^{24}Na	1,0	T^+	1.10^{-1}	10^{-2}	10^{-1}	10^{-2}	1.10^{-6}

* elsődlegesen jelzett termék radioaktiv koncentrációja

** másodlagosan jelzett termék radioaktiv koncentrációja

$$T^+ = \int_0^\infty e^{-\lambda t}\, dt = \frac{T_{1/2}}{0,693}$$

Az ipari nyomjelzéstechnikai vizsgálatoknál az inkorporációs veszély mind az alkalmazást végző, mind az üzemi dolgozókra nézve legtöbbször elhanyagolható; az általánosan alkalmazott kis radiotoxikusságu és rövid felezési idejü izotópok a környezet jelentéktelen időszakos elszennyeződését okozzák. Az egyszeri jelzésekhez használt radioaktiv anyag összaktivitása általában csak ezerszerese a "B" kategóriára megengedhető maximális évi dózist eredményező inkorporált radioaktiv izotóp aktivitásának. A "B" kategóriára vonatkozó MMD bekövetkezésének lehetősége általában 1/looo vagy annál kisebb, igy a dózisterhelés még akkor is jelentéktelen, ha az érintett személyek száma nagy.

Nyomjelzéstechnikai vizsgálatoknál a külső sugárzásból származó dózisterhelés is kicsi, a lakosság terhelése nem éri el az 1 manrem/év értéket kisérletenként. Az évenként országosan elvégzett kisérletekre a becsült összeg nem nagyobb, mint 5o manrem/év.

RADIOIZOTÓPOK IPARI ALKALMAZÁSÁNAK SZEREPE A LAKOSSÁG SUGÁRTERHELÉSÉBEN

A lakosságot érő sugárterhelés legfontosabb forrásai a természetes háttérsugárzás, az ionizáló sugárzás orvosi alkalmazása, a nukleáris robbantásokból származó fall-out és az atomenergia békés célu felhasználása. A dózisterhelésben az első kettő a jelentős, mig a fall-out járuléka kb. 2%, és a békés célu alkalmazásoké csupán o,5-1% a teljes terheléshez viszonyitva. A lakosság sugárterhelésének összetevőit, az ezekből származó biológiai károsodás mértékét sok szerző, pl. Fehér I. is összefoglalóan tárgyalja [11].

A nukleáris erőmüvek számának gyors növekedése a lakosság megengedhető dózisának alapos vizsgálatát váltotta ki. Bár az ezzel kapcsolatos vita még nem zárult le teljesen, várhatóan a jelenlegi 17o mrem/év érvényben marad, hiszen az eddigi tapasztalatok ezt biztonságos korlátnak mutatják. A 17o mrem/év értéket azonban a különböző sugárterhelési források között ésszerüen kell felosztani. K.Z. Morgan 1971-ben a következő felosztást javasolta:

- 5 mrem/év orvosi diagnosztikára;
- lo mrem/év orvosi terápiára;
- lo mrem/év a nukleáris energetikai iparra;
- 5 mrem/év az egyéb környezeti besugárzásokra;
- lo mrem/év a foglalkozási besugárzásokra, beleértve a nukleáris energiaiparban foglalkoztatottak besugárzásait is;
- 13o mrem/év tartalék [12].

Megjegyzendő, hogy a jelenlegi 17o mrem/év dóziskorlát nem foglalja magában a lakosság orvosi besugárzásból származó sugárterhelését.

A fenti felosztás alapján a radioizotópok ipari alkalmazásából származó dózisterhelést az egyéb környezeti besugárzásokra megadott 5 mrem/év-hez célszerü viszonyitanunk, ha eltekintünk az e területen hivatásszerüen dolgozók besugárzásától.

A tárgyalt becslések alapján a radioizotópok vizsgált ipari alkalmazásai, beleértve az ipari radiográfiát, hazánkban a fenti értéknek maximálisan lo%-át, azaz o,5 man-rem/év értéket kötnek le. Az alkalmazások gyors növekedése ezt az értéket többszörösére növelheti. Mivel a tárgyalt alkalmazások az atomenergia békés célu felhasználásának csak nagyon szük területét jelentik, indokoltnak látszik, hogy a jövőben a becslést tovább pontositsák. Az ipari nyomjelzéstechnikai vizsgálatokra összefoglalóan megállapitható, hogy még a jelenleginél sokkal elterjedtebb alkalmazásuk sem fogja a lakosság dózisterhelését számottevően befolyásolni. A cikkben tárgyalt sugárveszély becslési eredményeinek közvetlen alkalmazását az egyes területeken külön cikkben kivánjuk tárgyalni.

IRODALOM

1. Jelentés a radiográfiai vizsgálatok hazai helyzetéről 196o-1969 /OAB IASZ Munkabizottsági jelentés, Budapest 197o április/
2. *Biró T., Békés M.-né,* Az MTA Izotóp Intézete dolgozóinak külső dózisterhelése 1963-tól 1971-ig.
   Izotóptechnikai kutatások, MTA Izotóp Intézete, Budapest 237. o.
3. Radioizotópok sugárzása elleni védelem MSz 62-69.
4. *Predmerszky T.,* /személyes közlés/
5. Sugárzás elleni védelem ipari röntgen és müszaki besugárzó berendezésnél. MSz 836
6. *Benkó L.,* A PMB-6 tipusu betatron sugárzásának mérése, Izotóptechnika 16, /1973/ 159
7. *W. Rehak,* Risk of Internal Contamination: Its Influence on Monitoring Programs, Proc. IRPA 2th European Congr. Rad. Prot. Budapest, 3-5 May, 1972 Hungary /megjelenés alatt/
8. Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication lo, Pergamon Press, Oxford /1968/
9. *Keller, M.,* Jül-6o3 ST /1969/ S. 157
lo. ISO/R 171o-197oE
11. *Fehér I., Erdélyvári I.,* Nukleáris létesitmények környezetellenőrzésének modern módszerei, Izotóptechnika 16, /1973/ 199
12. *K.Z. Morgan,* Health Physics and Environment, IAEA-SM-148/45 Proc. Int. Symp. "Rapid Method for Measuring Radioactivity in the Environment" Neuherberg, 5-9, July, 1971

Beérkezett 1973. március 16-án.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/534-539

RADIOAKTIV KRÓMMAL (^{51}Cr) JELZETT HEPARIN VISELKEDÉSE BIOLÓGIAI RENDSZERBEN

Varga L.,* Kubászova T.,* Antoni F.**

*Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

**Semmelweis Orvostudományi Egyetem, Orvosi Vegytani Intézet, Budapest

Kisérleti állatokba adott ^{51}Cr-heparin komplex többkomponensü, csökkenő exponenciális függvény szerint tünik el a vérből. Feltételezik, hogy a heparin a májban felhalmozódik, majd bomlás után a vesén át kiválasztódik, és a vizelettel kiürül. A komplex biológiai rendszerekben is stabilnak bizonyult, és alkalmas a heparinanyagcsere vizsgálatára.

Поведение гепарина, меченного радиоактивным хромом /^{51}Cr/, в биологической системе
Варга, Л., Кубасова, Т., Антони, Ф.
^{51}Cr-гепариновый комплекс, введенный внутривенно экспериментальным животным, исчезает из крови по многокомпонентной понижающейся экспоненциальной функции. Предполагается, что гепарин вначале накапливается в печени, затем - после распада - выделяется почками и выводится из организма с мочой. Комплекс оказался устойчивым и в биологической системе и может быть использован в изучении метаболизма гепарина

Heparin, Labelled with Radiochromate /^{51}Cr/ in Biological System
Varga, L., Kubasova, T., Antoni, F.
The ^{51}Cr-heparine complex, after having administered to experimental animals is eliminated from the blood according to a multicomponent, descending exponential function. It is supposed that heparine is accumulated by liver, then, then,after decomposition, it is excreted by kidneys and leaves the organism with urine. The complex proved to be stabile even in biological system and to be applicable to the examination of heparine metabolism.

A heparint, mint potenciális antikoagulánst, illetve mint a lipid-transzportot kontrolláló faktort, évtizedek óta alkalmazzák az orvostudományban [1-5]. A klinikai felhasználás mellett jelentősek a stabil és biológiailag aktiv perorális heparinkészitményekkel, heparin analógokkal és antagonistákkal végzett kisérleti kutatások, amelyekkel a klinikai gyakorlat számára uj lehetőséget kivántak teremteni [6-8]. Ugyancsak jelentősek a heparinnak nem antikoaguláns hatásán alapuló kutatások is, amelyekben biológiai makromolekulákkal és sejtes rendszerekkel való kölcsönhatását vizsgálták [9-17]. Az utóbbi években egyre terjedő extrakorporális keringés mellett végzett mütétek és szervátültetések is mindinkább indokolják a heparin biológiai

hatásának és anyagcseréjének jobb megismerését. Nyilvánvaló, hogy ilyen jellegü kutatásokban a radioaktiv izotóppal nyomjelzett heparinnak fontos szerepe lehet; megkönnyiti a biológiai mintákban az egyébként nehézkesen és bizonytalanul elvégezhető heparin kimutatását, illetve meghatározását.

Varga és munkatársai 1971-ben leirtak egy egyszerü és gyors in vitro módszert a heparinnak ^{51}Cr-mal történő jelzésére [7]. A ^{51}Cr-heparin komplex radiokémiai szempontból tartósnak bizonyult in vitro körülmények között, és fizikokémiai módszerekkel vizsgálva, a makromolekula eredeti tulajdonságait megtartotta.

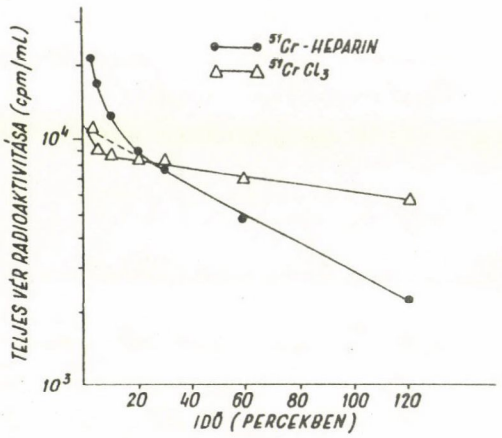
Jelen munka beszámol azokról a kisérletekről, amelyekben tanulmányoztuk a radioaktiv krómmal jelzett heparin viselkedését biológiai rendszerben. A jelzett heparint laboratóriumi állatok /nyul, kutya/ perifériás vérkeringésébe adva, meghatároztuk a vérből való eltünési sebességét, szervi eloszlását és kiürülését.

A ^{51}Cr-heparinkomplexet eredeti leirás szerint készitettük. A jelzéshez használt radioaktiv króm specifikációja: $^{51}CrCl_3$, fajlagos aktivitása 5o-15o mCi/mgCr, pH=3-4, CJS. 2P, előállitója The Radiochemical Centre, Amersham, England. A jelzett heparin fajlagos radioaktivitása 2o-5o µCi/mg, biológiai aktivitása 121 NE/mg volt. Ismeretes, hogy a kereskedelmi heparin heterogén összetételü, ezért a kiindulási anyagot cetil-piridinium-kloridos /1o%/, illetve alkoholos kicsapással tisztitottuk. A heparin homogenitását jelzés előtt és után agarózgél-elektroforézissel összehasonlitottuk. Az elektroforetogramok között lényeges eltérést nem tapasztaltunk.

A ^{51}Cr-mal jelzett heparin keringési féléletidejének meghatározása céljából a preparátumot intravénásan adtuk be nyulaknak. A beadást követően szcintillációs számlálóval meghatároztuk a különböző időpontokban vett vérminták radioaktivitását. Az 1 ml teljes vérre vonatkozó percenkénti beütésszám-változást az 1. ábra tartalmazza. A ^{51}Cr-heparinkomplex eltünése a nyulak vérpályájából több komponensü, exponenciálisan csökkenő függvény szerint változott. A 2o. perctől kezdődően a görbe szemilogaritmikus koordinátarendszerben jó közelitéssel egyenest adott. E szakasz felhasználásával a keringési féléletidőre 51 percet kaptunk. Ugyanezen az ábrán feltüntettük az ionos formában levő $^{51}CrCl_3$-mal végzett kontrollvizsgálatok eredményét is. A radioaktivitás csökkenése ez esetben is több komponensü exponenciális lefutásnak felelt meg, ennek meredeksége azonban lényegesen eltér a ^{51}Cr-heparinkomplexre jellemző görbétől. A $^{51}CrCl_3$ esetén megállapitott keringési féléletidő 185 percnek adódott.

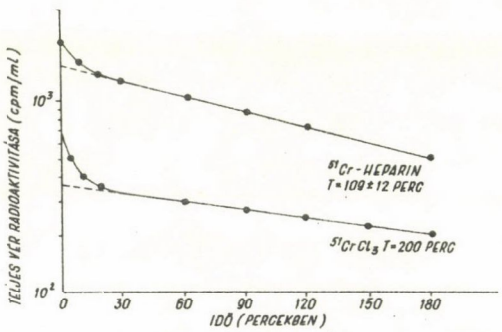
Hasonló eredményeket kaptunk a kutyákon végzett kisérletsorozatban is /2. ábra/. A ^{51}Cr-heparin és a $^{51}CrCl_3$ eltünése a keringésből legalább két komponensü, exponenciálisan csökkenő függvénnyel jellemezhető, melynek gyors, keveredési szakasza 2o percig, lassabban csökkenő szakasza 2o-tól 18o percig

tart. A megállapitott féléletidő ^{51}Cr-heparinkomplex esetén 109 percnek, $^{51}CrCl_3$ esetén 200 percnek felelt meg.



1. ábra

^{51}Cr-heparin és $^{51}CrCl_3$ eltünése a nyulak vérkeringéséből



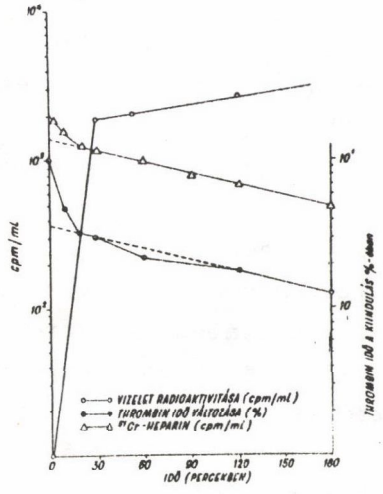
2. ábra

^{51}Cr-heparin és $^{51}CrCl_3$ eltünése a kutyák vérkeringéséből

Kutyakisérletben vizsgáltuk a vérplazma, a vizelet radioaktivitása és a trombinidő változása közötti összefüggést. Eredményeinket a 3. ábrán foglaltuk össze. A vérplazma radioaktivitásával párhuzamosan csökkent az antikoaguláns hatás is. Ez bizonyitékul szolgál arra, hogy a ^{51}Cr és heparin komplex formában van jelen a vérkeringésben. A folyamatos exkréció következményeként a vizeletben mért radioaktivitás nő az idő függvényében. A kutyáknak intravénásan beadott ^{51}Cr-heparinkomplex szervi eloszlását vizsgálva, azt találtuk /4. ábra/, hogy 2 óra mulva a jelzett preparátum közel 37%-a a májban, 2,4%-a a vesében, 2%-a a lépben és 1,5%-a a tüdőben mutatható ki. Hasonló meghatározásokat nyulkisérletekben is végeztünk /5. ábra/. Eredményeink szerint a ^{51}Cr-heparin főleg a májban halmozódott fel, kisebb mértékben a tüdőben és a lépben. Az azonos szervre vonatkoztatott 2, 24 és 48 órás értékek lényegesen nem különböztek egymástól.

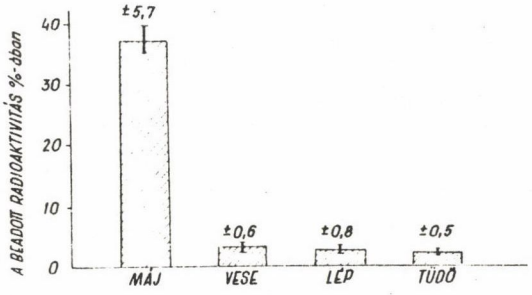
Ezek az adatok eltérnek Loomis vizsgálati eredményeitől, aki ^{35}S-heparin eloszlását tanulmányozta patkányokban, és azt találta, hogy 2 óra mulva legtöbb a vesében és májban halmozódott [18].

A májban felhalmozódott ^{51}Cr-heparin 5o%-a vizzel kivonható, és 5o%-a vizben nem oldható májfrakcióban található. Annak eldöntésére, hogy a nyulmájban kimutatható radioaktivitás ^{51}Cr-heparinkomplexből származik-e, vagy a króm szabad formában kötődik-e a máj strukturájához, a vizben oldódó frakciót Sephadex G-5o oszlopon kromatografáltuk /6. ábra/. Az oszlopról eluált frakciók radioaktivitása megfelelt annak a szakasznak, amelyben a krómmal jelzett heparin lokalizálódik [7]. Ezzel bizonyitottuk, hogy a májból készitett vizes extraktumban a heparin ^{51}Cr-mal képzett komplex formájában volt jelen.



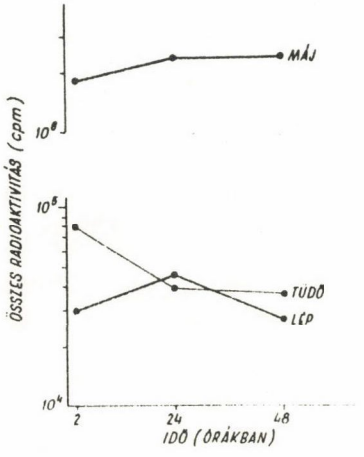
3. ábra

A vérplazma, illetve vizelet radioaktivitásának és a trombinidőnek változása a ^{51}Cr-heparin beadása után



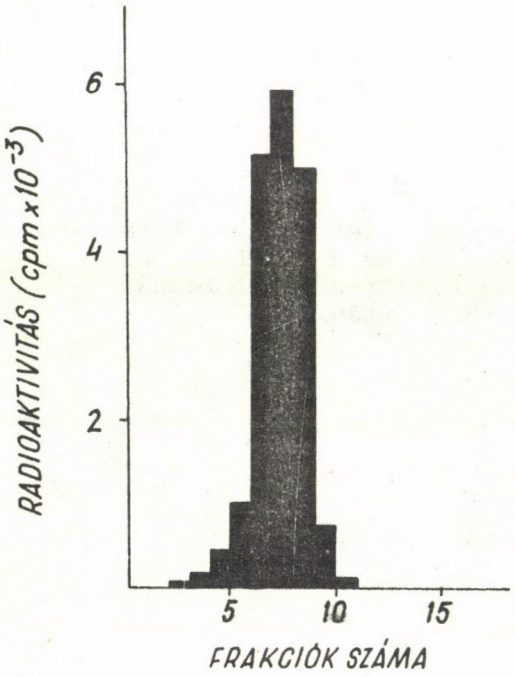
4. ábra

A kisérleti állatok /kutya/ különféle szerveinek ^{51}Cr-heparin-tartalma beadása után 120 perccel



5. ábra

A ^{51}Cr-heparin-eloszlása nyulszervekben i.v. beadása után 2, 24 és 48 óra mulva



6. ábra

Nyulmáj vizes extraktumában levő ^{51}Cr-heparin oszlopkromatogramja /Sephadex G-50/

MEGBESZÉLÉS

A kisérleti állatokon felvett ^{51}Cr-heparin- és $^{51}CrCl_3$-véreltünési görbék, a köztük meglevő különbség azt bizonyitja, hogy a ^{51}Cr-heparinnak és az ionos krómnak a vér alakos elemeihez és vérfehérjékhez való kötődése lényegesen eltér egymástól, és különbözőképpen metabolizálódnak. Erre utalnak a keringési féléletidőre kapott különböző értékek.

A vér radioaktivitásának és a trombinidőnek párhuzamosan futó változása ugyanakkor megerősiti azt a tényt, hogy a keringésben levő króm a heparinnal képzett komplex formájában van jelen. Ettől eltérő esetben ugyanis divergencia mutatkozna e paraméterek között.

A vizeletben mért radioaktivitás alapján az eddigi vizsgálatainkkal nem tudjuk eldönteni, hogy az szabad krómnak, a ^{51}Cr-heparin valamilyen radioaktiv bomlástermékének vagy ^{51}Cr-heparinnak változás nélkül a vizeletben való megjelenésének tulajdonitható-e. Az erre vonatkozó irodalmi adatok szerint a kis dózisu ^{35}S-heparin beadása után a jelzett heparin változás nélkül kiürül a vizelettel; nagyobb dózis esetén a heparinról a kén leválik, és mint szerves szulfát jelenik meg a vizeletben [19,20].

A kisérleti eredmények alapján a laboratóriumunkban előállitott radioaktiv krómmal jelzett heparin biológiai rendszerben is stabilnak bizonyul.

IRODALOM

1. *Abilgaard, U.*, Scand. J. Haemat. 5, /1968/ 44o
2. *Biggs, R.*, et al. Brit. J. Haemat. 19 /197o/ 283
3. *Rutstein, D., Castelli, W.P., Nickerson, R.J.*, The Lancet 1/76o3 /1969/ 1oo3
4. *Aznar, J.*, Rev. Española de Fisiologia 25 /1969/ 87
5. *Boberg, J.*, Lipids 5 /197o/ 5
6. *Di Ferrante, N.*, Carbohydrate Res. 13 /197o/ 3o6
7. *Varga, L., et al.*, Int. J. Appl. Rad. Isot. 22, /1971/ 165
8. Ефимов, В.С., Фармакол. и токсикол. 5 /1968/ 6o1

9. *Benes, L., Rotreklová, E.*, Folia Biol. 16 /197o/ 196
1o. *Skalka, M., Matyásová, J.*, Nature 212 /1966/ 1253
11. *Hagmar, B., Boeryd, B.*, Path. Europ. 4 /1969/ 274
12. *Hagmar, B.*, Path. Europ. 4 /1969/ 283
13. *Mims, C.A.*, Aust. J. Exp. Biol. Med. Sci. 47 /1969/ 157
14. *Narrby, H.*, Virchows Arch. Path. Anat. 9 /1971/ 292
15. *Engel, R.H., Riggi, S.J.*, J. Pharm. Sci. 58 /1969/ 1372
16. *Örgen, S., Lindahl, U.*, Biochem. J. 125 /1971/ 1119
17. *Koh, T.Y., Bharucha, K.R.*, J. Lab. Clin. Med. 8o /1972/ 47
18. *Loomis, T.A.*, Proc. Soc. Exp. Biol. Med. 1o6 /1961/ 49o
19. *Danishefsky, J., Eiber, H.B.*, Arch. Biochem. 85 /1959/ 53
2o. *Eiber, H.B., Danishefsky, J., Borelli, F.J.*, Angiology 11 /196o/ 4o

Beérkezett 1973 augusztus 7-én.

HIREK

IZOTÓPOK AZ IPARBAN

A Magyar Kémikusok Egyesületének lakk- és festékszimpóziumán Maleczki Emil, Bácskai Gyula és Badacsonyi Tivadar lakk- és festékbevonatok korrózióállóságának radioaktiv izotópos vizsgálatáról számolt be. Neutronbesugárzással aktivált vasmintákat festék- és lakkbevonattal láttak el, majd gyorsitott korróziós vizsgálatnak vetették alá. A bevonaton keresztüldiffundált radioaktiv vasionok számlálási sebességéből megállapitható a korrózió megindulásának időpontja, valamint mértéke.
Ujitók Lapja, julius 11.

A Veszprémi Vegyipari Egyetemen kidolgozott izotópos csővizsgáló berendezéssel ellenőrizhető a gáztávvezeték belső felületének állapota. Radioaktiv izotopos nyomjelzéssel megállapitható a fémfelületek védőrétegének eloszlása és a különféle fémek felületén keletkező passziv rétegek kialakulása, szerkezete is. A debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetemen a már kialakult korróziós réteg izotópos vizsgálatáról következtetnek vissza a korrózió okaira.
Müszaki Élet, julius 20.

A Vasuti Tudományos Kutatóintézet a vasuti járművek fődarabjainak, alkatrészeinek /pl. Diesel-motoroknak, kerékabroncsoknak és sineknek/ kopását, a kopásállóságot növelő módszereket, valamint a korróziót izotópos nyomjelzéssel és aktiválásos analizissel is vizsgálja.
Magyar Hirlap, julius 8.

A Dunai Cement- és Mészmüvek IV. kemencéjében száraz eljárással égetik a klinkert. A kemencében fellépő dugulások számának csökkentésére a MTA Izotóp Intézetével közösen végzett nyomjelzéses vizsgálat felvilágositást ad az anyagfeltapadás megindulásáról, igy a dugulás megelőzhető. 1971-ben a dugulás miatt az évi üzemidő 5%-a esett ki, 1972-ben, a kisérleti berendezés üzemelése idején, ez az érték 2,8%-ra csökkent.
Müszaki Élet, junius 8.

A Borsod megyei Kesznyéten 10 éve épült hid vasszerkezetének hegesztését a forgalom lezárása nélkül, izotópos radiográfiával ellenőrzik a Közuti Tudományos Intézet és az Epitőanyagipari Minőségvizsgáló Intézet munkatársai.
MTI hir, julius 3., Népszava, julius 4.

IZOTÓPOK A MEZŐGAZDASÁGBAN

Az Északmagyarországi Vizügyi Igazgatóság Borsod és Heves megyében 10 állomásból álló izotópos nedvességmérő hálózatot hozott létre. 5 méter mélységig 10 cm-enként állapitják meg a talajviz változását és a telitettség mértékét. Ebből határozzák meg, mennyi vizet kell az adott területen öntözésre felhasználni. A méréseket 10 naponként szeptember 30-ig folytatják.
Északmagyarország, augusztus 2.

A gödöllői Agrártudományi Egyetem Örökléstani és Növénynemesitési Tanszékének sugárkertjét, a radioaktiv besugárzásnak a növénytermesztésben való felhasználási eredményeit ismerteti a Szabad Föld julius 28-i száma.

VEGYES HIREK

A MTESz Központi Szabványositás- és Minőségügyi Bizottságának környezetvédelmi ankétján felmerült az a javaslat, hogy a szabványositandó környezetvédelmi módszerek sorába célszerü lenne felvenni az izotóptechnikai vizsgálatokat is.
Müszaki Élet, julius 6.

Az ACHEMA nemzetközi vegyipari kiállitáson a Magyar Ásványolaj- és Földgázkisérleti Intézet nagy érdeklődés mellett mutatta be azt a technológiáját, amelyet radioaktiv izotópok bitumenbe való ágyazására dolgozott ki.
Népszabadság, julius 3.

A solymári izotóptemető megtelte miatt Püspökszilágyi határában uj izotóptemető épitését kezdték meg. A 40 milló forintos épitkezés 1975 nyarára fejeződik be, s kapacitása legalább 25 évre megoldja radioaktiv hulladéktárolási problémáinkat.
Déli Hirlap, Miskolc, május 17,, Népszava, Északmagyarország, Délmagyarország stb. május 18., Népszabadság, junius 2.

HELYESBITÉS

Ez évi 7-8. számunk szerzői közül kimaradt Merétey Katalin, az orvostudományok kandidátusa, Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, 1221, Budapest, Pentz K.u.5

Ugyanott Vándor Ferenc tudományos fokozata helyesen: az orvostudományok doktora

A hibákért elnézésüket kérjük.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

HU ISSN 0004-721

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 10. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 10. SZÁM

BUDAPEST 1973. OKTÓBER

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős főszerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség cime: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114. Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk irói:

Herbert Frittum, Division of Development, Department of Safeguards and Inspection, A-1011 Vienna, Kärntnerring 11, Austria

Hernádi Ferenc, az orvostudományok doktora; Gábor R
Debreceni Orvostudományi Egyetem Gyógyszertani Intézete, 4012 Debrecen

Csongor József,
Debreceni Orvostudományi Egyetem Kórélettani Intézete, 4012 Debrecen

Sas Vilmos
Tétényi uti Kórház, 1115 Budapest, Tétényi ut 12/16

Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa; Farkas György; Kutas Vera
Orzságos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészség-ügyi Kutató Intézet, 1221 Budapest, Pentz K.u.5

Urbánné Nagy Zsuzsanna
Semmelweis Orvostudományi Egyetem Biológiai Intézete, 1094 Budapest, Tüzoltó u. 58

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-9004

1973. 10. szám.

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

Az analitikai kémia szerepe a nukleáris anyagok nemzetközi biztositéki ellenőrzésében 547
H. Frittum

Роль аналитической химии в международной системе гарантий

The Role of Analytical Chemistry in International Safeguards

Nagy áramu, kis feszültségü gyorsitók..... 561
Pető G.

Ускорители высокой интенсивности и низкого напряжения

High Intensity, Low Power Accelerators

Az ionizáló sugárzás által létrehozott DNS-"single-strand" törések és helyreállitásuk E.coli K12-ben..... 578
Hernádi F., Gábor R., Csongor J.

Вызывание ионизирующим излучением и восстановление "single-strand" переломов молекул ДНК в бактериях E.coli K12

Incidence and Repair of X-Ray Induced Single Strand Breaks in DNA of E.coli K12 Cells

Izotóppal jelzett streptase előállitása..... 584
Sas V., Kocsár L., Farkas Gy., Kutas V., Urbánné, Nagy Zs.

Изготовление Стрептаза, меченного радиоактивным изотопом

Preparation of Isotope Labelled Streptase

HIREK..... 588

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/547-560

AZ ANALITIKAI KÉMIA SZEREPE A NUKLEÁRIS ANYAGOK NEMZETKÖZI BIZTOSÍTÉKI ELLENŐRZÉSÉBEN*

H. Frittum
International Atomic Energy Agency, Vienna

Az ellenőrzendő berendezések és folyamatok. A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség biztositéki ellenőrzési rendszere. A mérőrendszer. Analitikai meghatározások.

Роль аналитической химии в международной системе гарантий
Фриттум, Х.

Установки и процессы, подвергнутые контролю. Система гарантий МАГАТЭ. Система измерения. Аналитические измерения.

The Role of Analytical Chemistry in International Safeguards
Frittum, H.

Facilities and processes to be controlled. The safeguard system of the IAEA. Measurement systems. Analytical determinations.

Beszámolóm első részében a Nemzetközi Atomenergia Ügynökségnek anyag-forgalom ellenőrzésére kidolgozott rendszerét szeretném körvonalazni, a második részben pedig az analitikai kémia szerepét részletezem ezen rendszeren belül.

Az IAEA INFCIRC/153 sz. kiadványa lefekteti az Ügynökség és az egyes Államok között az atomsorompó-egyezmény ellenőrzésével kapcsolatos egyezmények szerkezetét és tartalmát, tehát meghatározza a NAÜ biztositéki ellenőrzési rendszerét.

A rendszernek az a célja, hogy időben észlelje, ha nukleáris anyagok jelentősebb mennyiségét a békés felhasználás területéről atomfegyverek vagy más robbanó töltetek gyártására, vagy egyéb, nem ismert célra átirányitják és, hogy a gyors észlelés veszélyével elriasszon az ilyen fajta tettektől.

---

*A Magyar Tudományos Akadémián 1972. junius 16-án elhangzott előadás.

AZ ÜZEMANYAGCIKLUS

A NAÜ biztositéki ellenőrzési rendszerének legfőbb figyelme az üzemanyagciklussal kapcsolatos nukleáris létesitményekre összpontosul.

Az üzemanyagciklus az uránnal kezdődik. Ide tartozik a bányászat, apritás, dusitás, extrakció. A végtermék neve "sárga massza", amely 90% U_3O_8-ból és szennyező anyagokból áll; a fütőelemgyártás kiindulási anyagának szokásos formája a nemzetközi kereskedelemben.

Átalakitó üzem

A "sárga masszát" extrakciós módszerekkel tisztitják, s vagy urán fémmé redukálják, vagy UO_2-vé alakitják. Reaktor-üzemanyag mindkettőből előállitható. A biztositéki ellenőrzés annál a pontnál kezdődik, amelynél az urán vagy vegyületei elérik azt a reaktortisztasági fokot, amelynél már üzemanyagnak használhatók.

Fütőelemgyártó üzem

Az oxid üzemanyag gyártása ugy történik, hogy az UO_2 port tablettákba préselik, s magas hőfokon szinterelik, a pasztillákat csövekbe töltik, hogy üzemanyagrudakat vagy tüket formálhassanak belőlük, s ezeket szerelik össze kötegekké. A fémüzemanyag-gyártó sorokban az urántetrafluoridot kémiailag redukálják uránná. A fémet rudakká öntik, méretre formálják, tisztitják, boritással látják el, és igy teszik a kötegekbe. Az uránfém gyártása alatt keletkezett salak, forgács igen nagy probléma az ellenőrzés számára.

Kémiai ciklus - dusitás

Az átalakitó üzem egy másik ága a dusitó üzembe vezet. A dusitás azt jelenti, hogy a természetes urán-235 0,711 sulyszázalékos koncentrációját megnövelik.

Az U_3O_8-at tetrafluoriddá /UF_4/, majd UF_6-á alakitják. A dusitás gázdiffuzióval, soklépcsős folyamatban történik. A világon igen kevés dusitó üzem müködik. Dusitó üzemmel az Egyesült Államok, a Szovjetunió és Nagy-Britannia rendelkezik. Egy más fajta dusitási módszer, a gázcentrifuga fejlesztése, mellyel Nagy-Britanniában, a Német Szövetségi Köztársaságban és Hollandiában foglalkoznak, igen gyorsan halad előre.

A dusitott UF_6-ot az átalakitó üzemben szintén UO_2-vé alakitják át, és oxid üzemanyagot gyártanak belőle. Más esetekben fémmé redukálhatják, és aluminiummal ötvözik ugyanabban a folyamatban /pl. UF_6-ot olvasztott aluminiumon buborékoltatva keresztül/; az ötvözetet azután lemezekké sajtolják, s kutató reaktorok fütőelemeként használják.

Kiégett fütőelemeket feldolgozó üzem

A gyártás befejezésével az üzemanyagot a reaktor hideg tárolójába szállitják, innen az aktiv zónába kerül, utána a kiégett fütőelemeket tároló

tartályba, majd az ujrafeldolgozó üzembe. A fütőelemgyártó üzem fém vagy oxid termékei valójában az utolsó olyan pont, ahol még kémiai mérés végezhető.

A kiégett üzemanyag ujrafeldolgozásának első lépése az elhasznált fütőelemek feloldásából áll. Ez a kiindulási oldat az első, amelyben a nukleáris anyagok urán- és plutóniumtartalmának meghatározására alkalmas kémiai mérések ismét elvégezhetők. A meglehetősen bonyolult kémiai eljárás magába foglalja a termék elválasztását, tisztitását és koncentrálását. Az ujrafeldolgozás legfontosabb terméke a plutónium, amely rendszerint 5-9 kg/tonna mennyiségben van jelen a reaktor elhasznált üzemanyagában, természetesen az üzemanyag tipusától és kiégési fokától függően. A plutóniumot gyors szaporitó reaktornak, valamint PuO_2 és UO_2 keverék formájában, termikus reaktorokban üzemanyagként hasznositják.

Fütőanyagleltár a reaktorban

A reaktorban lévő nukleáris anyag mennyisége a reaktor tipusától függően változik. Az erőmüreaktorokban tonna, bizonyos fajta kutatóreaktorokban kilogramm nagyságrendü. A ^{235}U-tartalom a természetes és a 90% feletti dusitás közé esik. A kritikus rendszereket, kutatási és fejlesztési létesitményeket és általában más olyan helyeket, amelyeken nukleáris anyagok előfordulhatnak, csak a teljesség kedvéért emlitjük. A fütőelemciklus képe azonban nem mindig olyan egyszerü, mint most vázoltuk. Egyes országokban sokkal bonyolultabb lehet.

A NAÜ BIZTOSITÉKI RENDSZERE /SAFEGUARDS/

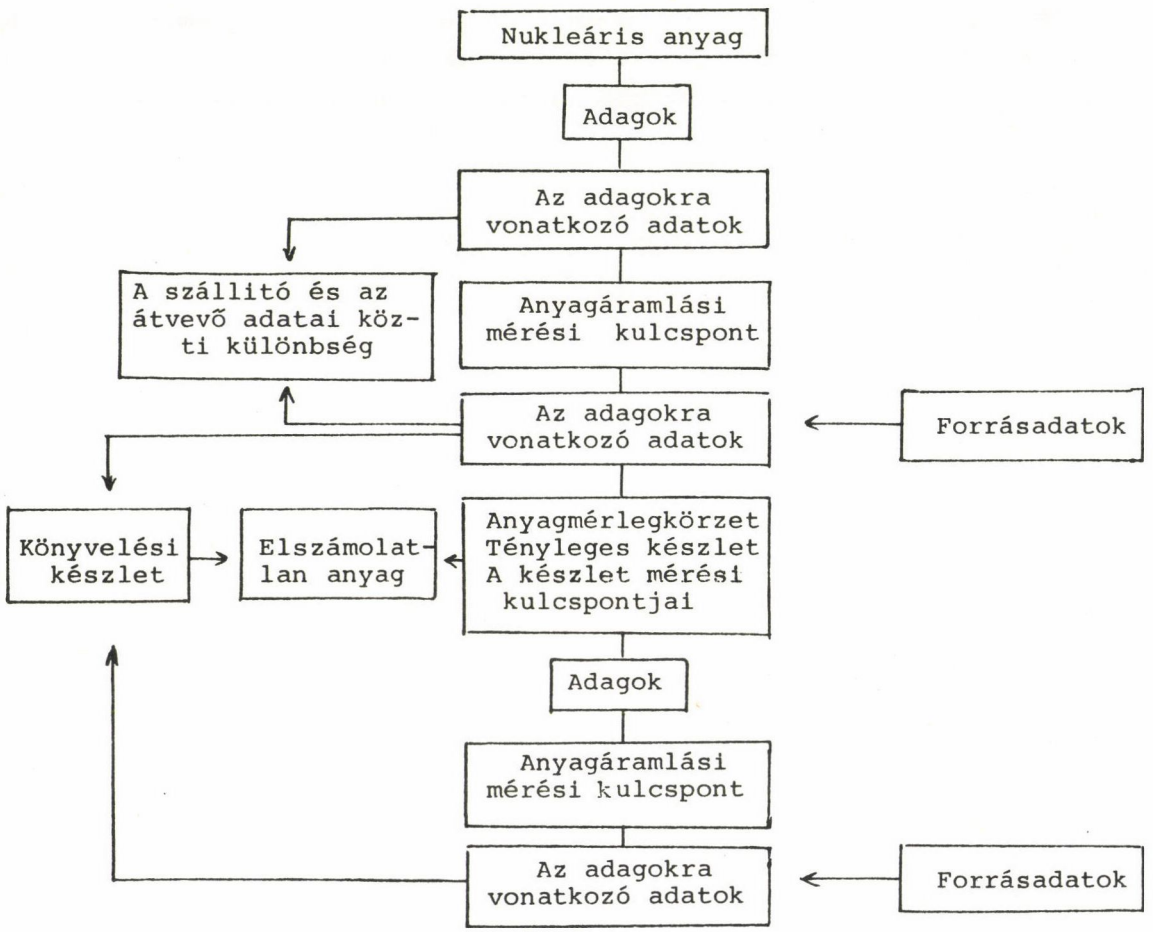
A nemzetközi biztositéki ellenőrzési rendszer legfontosabb eszköze az anyagmérleg alapján történő elszámolás. Fontos kiegészitő intézkedések, illetve rendszabályok a nukleáris létesitmények zárt határainak és felügyeletük biztositása.

Az Ügynökség és az egyes államok közötti egyezménynek lehetővé kell tennie, hogy az Ügynökség müszaki ellenőrzésének eredményeként a következő megállapitást tehesse: az önálló anyagelszámolási körzetekben egy adott időszakban az elszámolatlan anyag, azaz minden olyan hasadóanyag-hiány vagy esetleg többlet, amelynek eredetéről, illetve okáról nem tudnak hitelt érdemlően számot adni/, kisebb a mérési hibákból származható eltéréseknél.

Ehhez feltételezendő, hogy az ellenőrizendő nukleáris anyagra vonatkozó anyagelszámoltatási rendszer a következő adatokat tartja nyilván;

- anyagmérleg-körzetek szerkezete;
- a körzetbe kerülő, ott gyártott vagy onnan elszállitott, eltünt vagy másképpen eltávolitott nukleáris anyagok és készletek mérésekkel meghatározott mennyisége ;

- a mérési adatok szórásának és pontosságának, valamint bizonytalanságok kiértékelése;
- a szállitó és átvevő mérései közötti különbségek feltüntetése és kiértékelése;
- a készletek leltározása jól megalapozott fizikai mérések alapján, olyan időközönként, amelyekben az anyagnyilvántartási mérlegeket le kell zárni;
- nem mért készletek és veszteségek kiértékelése jól megalapozott eljárások alapján.



1. ábra

Az anyagnyilvántartás elve

1. Nukleáris anyag minden olyan nyers- vagy különleges hasadó anyag, melyet a NAÜ Alapokmány cikkelye annak nevez.
2. Az adag a nukleáris anyag olyan mennyisége, amelyet könyvelési szempontból a mérési kulcspontokon egységként kezelnek, s melynek az összetételét és mennyiségét egyetlen specifikáció- vagy méressorozattal határozzák meg. A nukleáris anyag lehet ömlesztve vagy különálló tételekben.

3. Az adagra vonatkozó adatok a nukleáris anyag minden egyes elemének teljes sulyát, plutónium és urán esetén az izotópösszetételt jelentik. A könyvelés egységei a következők:
   a/ a plutóniumtartalom grammban,
   b/ a teljes urán grammban és a $^{234}U+^{233}U$- tartalom grammban, ha az urán ezekben az izotópokban dusitott; és
   c/ a tórium-, természetes vagy kiégett urán-tartalom kg-ban.
   A jelentések céljára az adagon belüli egyedi tételek sulyát össze kell adni, mielőtt a legközelebbi egységre kerekitünk.

4. A mérési kulcspont olyan hely, ahol a nukleáris anyag az anyagáramlás vagy a készlet meghatározása céljából megmérhető formában jelenik meg. A mérési kulcspont igy magába foglalja, de nem korlátozódik a beáramlásra és kiáramlásra /magába foglalva a mért veszteséget/, valamint az anyagmérlegkörzetekben való tárolásra.

5. A forrásadatok azokat az adatokat jelentik, melyeket a mérés vagy kalibráció alatt regisztráltak, vagy amelyeket olyan empirikus összefüggések levonására használtak, amelyek azonositják a nukleáris anyagot, és megadják az adagra vonatkozó adatokat. A forrásadat tartalmazhatja például a vegyületek sulyát, az átszámitási tényezőket az elem sulyának meghatározására, a fajsulyt, elemkoncentrációt, izotóparányt, a térfogat- és manométerleolvasások közötti összefüggéseket, valamint az előállitott plutónium és a termelt teljesitmény közötti összefüggést.

6. Az anyagmérlegkörzet olyan területet jelent a létesitményen belül vagy kivül, amelyen
   a/ a nukleáris anyag mennyiségét minden be- vagy kiszállitásnál meg lehet határozni; és
   b/ a nukleáris anyag tényleges készletét meg lehet határozni, ha szükséges, a megadott eljárásoknak megfelelően,
   annak érdekében, hogy az anyagmérleget az ügynökségi ellenőrzés részére meg lehessen adni.

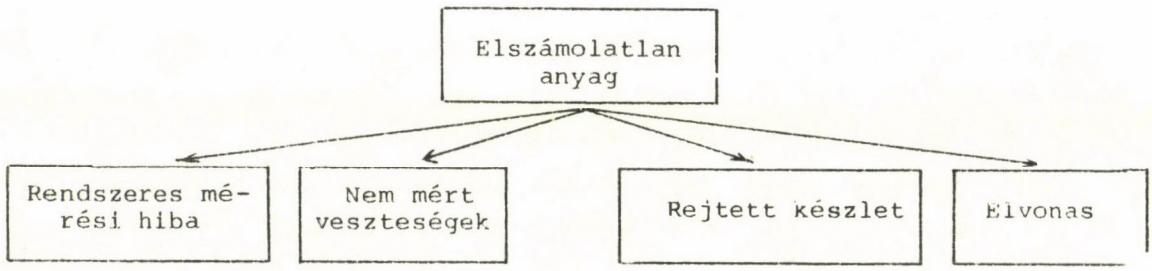
7. A tényleges készlet az adott időben az anyagmérlegkörzetben található nukleáris anyagok adagjainak mérés vagy becslés alapján a megadott eljárásokkal összhangban megállapitott összegét jelenti.

8. A szállitó és átvevő adatai közti különbség azt a különbséget jelenti, mely egy nukleáris anyag egy adagjának a szállitó anyagmérlegkörzetében megállapitott és az átvevő anyagmérlegkörzetében mért mennyisége között adódik.

9. Egy anyagmérlegkörzet könyvelési készlete a szóban forgó körzet legfrissebb tényleges készletének, valamint az összes olyan árukészletváltozásnak algebrai összegét jelenti, mely a leltár felvétele óta történt.

10. Az elszámolatlan anyag a könyvelési készlet és a tényleges készlet közötti különbség. Okai a következők lehetnek:

1/ rendszeres mérési hiba; 2/ nem mért veszteségek; 3/ rejtett készlet; 4/ elvonás.



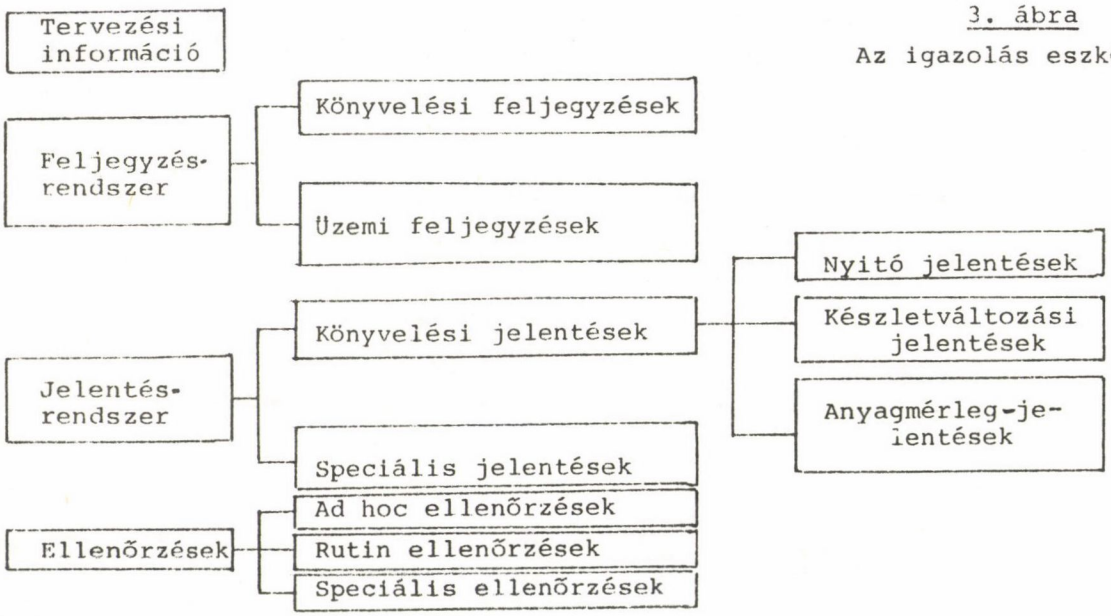
2. ábra

1961 óta a NAÜ biztositéki ellenőrző tevékenységét az egyes államok által előterjesztett anyagkönyvelési /nyilvántartási/ jelentésekre és a nukleáris anyagok mennyiségéről és helyéről vezetett feljegyzések vizsgálatára alapozza.

Lényegesen uj elem a Biztositéki Bizottság által felvázolt modelegyezményben, hogy

- meghatározza: a biztositéki ellenőrzés technikai célja mennyiségi következtetés levonása;
- bevezeti a bizonytalanság elvét, mely minden technikai következtetéssel együttjár, és
- ugyanazokkal az eszközökkel biztositja az igazoló eljárások meghatározását, s igy lehetővé teszi, hogy a NAÜ megkisérelhesse a következtetés levonását.

A következő táblázaton az igazolás eszközeinek négy csoportja látható.



3. ábra

Az igazolás eszközei

1. A meglévő létesitményekre vonatkozó tervezési információt az illető államnak kell az Ügynökségnek megadnia.

2. A feljegyzéseket minden anyagmérlegkörzet számára az ugynevezett kiegészitő megállapodásban kell leirni.

   Ez a következőkből áll:

   a/ a biztositéki egyezménynek alávetett nukleáris anyagokra vonatkozó könyvelési feljegyzések;

   b/ az ilyen nukleáris anyagokat tartalmazó létesitmények üzemi feljegyzései.

3. Az állam által az Ügynökségnek az egyezménynek alávetett nukleáris anyagokról adandó jelentések a következőkből állnak:
   - könyvelési jelentések, nyitó jelentések, készletváltozási jelentések, a tényleges készlet kimutatása, anyagmérlegjelentések és speciális jelentések.

4. A modelegyezmény kikötése alapján a NAÜ-nek a következő ellenőrzések álhatnak jogában:
   - ad hoc, rutin és speciális ellenőrzések.

A MÉRÉSI RENDSZER

A nukleáris üzemanyagciklusban a nyers és különleges nukleáris anyag /ss anyag/ minőségének és mennyiségének meghatározására szolgáló mérési rendszert három összefüggő területen lehet vizsgálni: mérések egy tömegben, mintavétel és analitikai meghatározás.



4. ábra

A mérési rendszer

1. Egy tömegben végzett méréseknek azokat a méréseket nevezzük, melyek a teljes térfogattal, a bruttó és nettó sullyal,teljes darabszámlálással vagy a vizsgált anyag teljes mennyiségének egyéb mérésével vannak összefüggésben.

2. A mintavétel a vizsgált anyag mintáinak vagy reprezentativ mintáinak elő-

állitására szolgáló eljárásokra és technikákra vonatkozik /minimális beavatkozás, minimális szükséges információ, nemzeti és NAÜ biztonsági szabályok, a mintaanyag minimális mennyisége/.

3. Az analitikai meghatározás a vizsgált anyag mintáinak specifikus jellemzőire vonatkozik.

A végső mérési eredmény, melyet az anyag egy adott mennyiségére kaptunk, a mérési rendszerek mindhárom területén kapott eredményeitől függ. Ezen területek eredménye ismert matematikai összefüggésben van a végeredménnyel. Az analitikai meghatározás, a mintavétel folyamat, valamint az egy tömegben végzett mérés bizonytalanságát mind figyelembe kell venni az anyagmennyiség teljes bizonytalanságának meghatározásához. Ezen felül minden területen több más tényező növelheti a végső mérési eredmény bizonytalanságát.

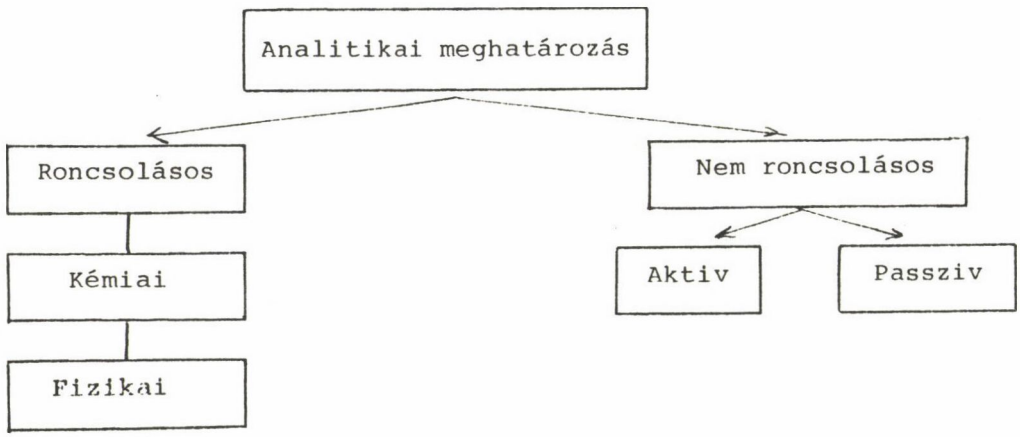
Például egy feldolgozó edényben adott oldatban levő ^{235}U-tartalom meghatározása magába foglalja:

1 az edény folyadékszintjének mérését, melyből, kalibrációs egyenlettel, a térfogat meghatározható;
2 a folyadék homogenizálását és a minták eltávolitását; és
3 a minta előkészitését és az uránkoncentráció és izotópösszetétel meghatározását.

Ezért szükséges, hogy az egyes tényezőknél fellépő rendszeres és véletlen hibát az anyag teljes mennyiségére vonatkozó végső számitott eredmény hibájára vonatkoztassuk.

ANALITIKAI MEGHATÁROZÁSOK

Az analitikai meghatározások a vizsgált anyag specifikus mintajellemzőinek mérésével vannak kapcsolatban. Roncsolásos és nem roncsoló módszereket szoktunk megkülönböztetni, bár néha ez nehéz.



5. ábra

A roncsolásos módszerek többnyire kémiaiak, ahol az állapot, az összetétel, a vegyérték és egyéb tulajdonságok megváltoznak. Ezeket követik a fizikai müveletek, mint pl. a sulymérés, elektromos, mágneses és más mérés.

A nem roncsoló mérések között aktiv és passziv módszereket lehet megkülönböztetni. A nem roncsoló módszerek a biztositott ellenőrzés területén a fejlődésnek még kezdeti szakaszában vannak; bizonyos mérési kulcspontoknál alkalmazzák őket az üzemanyagciklusban.

A passziv eljárások a vizsgált anyagokból jövő γ-, n-, α-, β-sugárzást aknázzák ki. A leginkább használt eljárás az egy- és többcsatornás γ- és α-analizis és a β-spektrometria. Plutóniummérésre neutronkoincidencia-számlálókat használnak.

Az aktiv "kérdezés" olyan eljárás, amelynél az analizálandó anyagot külső forrásból jövő sugárzással bombázzuk. A magreakció termékét a mintában passziv eljárással detektálják. Az aktiv eljárások igen szelektivek és hatékonyak. Ezek számára főleg az üzemeltető által létesitett berendezést vagy hordozható laboratóriumot használnak.

Bizonyos mértékben fejlesztik a hasadó anyag áramlásának ellenőrzésére alkalmas in-line müszereket is.

A kémiai módszerek leirásával kezdem. A táblázatot, mely a mérés tipusát, röviditését és az elvét, valamint a minta mennyiségét tartalmazza, nem lehet teljesnek mondani. Vannak természetesen más módszerek is, de most csak a legfontosabbakat emlitem.

1. táblázat

Kémiai módszerek az uránkoncentráció meghatározására

Gravimetria	G	U_3O_8-á való égetés	1-5 g
Potenc.dikromát-titrálás	PT	oxidáció $U_{/IV/}$-$U_{/IV/}$	0,16-0,30 g
Potenc. ferri-szulfát-titrálás	PT	oxidáció $U_{/IV/}$-$U_{/IV/}$	0,025-0,05 g
Vezérelt potenciál-coulometria	COUL	redukció $U_{/VI/}$-$U_{/IV/}$	0,002-0,010 g
Izotóphigitás	ID	U-233 tü /spike/ tömegspektr.	µg
Röntgen-spektrometria	X-Ray	L-X sugarak INT standard	0,001-0,005 g
Fluorimetria	FLUO	fluoreszcens mérés	< mg

A plutóniumkoncentráció-meghatározással kapcsolatban ki kell emelni, hogy a munkát plutónium kezelésére kesztyüs fülkékben vagy füstkamrában kell végezni.

2. táblázat

Kémiai módszerek plutóniumkoncentráció meghatározására

Amperometrikus ferroszulfát titrálás	AT	redukció $Pu_{/VI/}$-$Pu_{/IV/}$	0,005-0,020 g
Vezérelt potenciál-coulometria	COUL	oxidáció $Pu_{/III/}$-$Pu_{/IV/}$	0,0001-0,010 g
Potenciometrikus meghatározás	PT	oxidáció $Pu_{/III/}$-$Pu_{/IV/}$	0,025 g
Izotóphigitás	ID	Pu-242 tü /spike/ tömegspektr.	µg
TTA extrakció	TTA-α	α-számlálás	< mg

A plutónium és urán izotópösszetételét tömegspektrometriával állapitják meg. Más módszer lehet még az α- és a γ-spektrometria. A tórium és vegyületei kiseb jelentőségüek az üzemanyagciklusban; meghatározásukra gravimetriás és titrálásos módszereket használnak.

3. táblázat

Plutónium és urán izotópösszetételének meghatározása

TÖMEGSPEKTROMETRIA	ISO	IZOTÓPGYAKORISÁG	µg

Menjünk most vissza egy egyszerüsitett üzemanyagciklushoz, s nézzük meg, hogyan alkalmazzák a mérési módszert. Az üzemanyagciklusról feltételezzük, hogy a következőkből áll:

- tisztitási és/vagy diffuziós üzem;
- uránátalakitó és -gyártó üzem;
- reaktor;
- ujrafeldolgozó üzem;
- plutóniumtárolás ; és
- plutónium/urán-gyártó üzem.

A tisztitó és/vagy diffuziós üzemnek az anyagmérleg szempontjából három fő mérési kulcspontja van, ahol a nukleáris anyagot kvantitative meghatározzák. Ez tiszta helyzet, ahol a kémiai mérések és a térfogat- és sulymérések szolgálnak az anyagmérleg megállapitására.

4. táblázat

Tisztitó és/vagy diffuziós üzem

BEMENET	DUSITOTT ÉRC	G, DT, PT; ISO, IMP
TERMÉK	UF_6	G, DT, PT; ISO, IMP
HULLADÉK		FLUO

A következő táblázat uránátalakitó és gyártó üzem helyzetét mutatja be. A bemenet és a termék hozzáférhető a mérés és kémiai meghatározás számára, mig a fütőelemkötegekben a nukleáris anyag mennyiségét nem roncsoló eljárásokkal kell mérni és ellenőrizni.

5. táblázat

Uránátalakitó és-gyártó üzem

BEMENET	UF_6	G, DT, PT; ISO, IMP
TERMÉK	U-fém UO_2 gyöngyök	G, DT, PT; ISO, IMP
FÜTŐELEMKÖTEG	tokolt termék	NDT
HULLADÉKOK		FLUO

Az üzemanyagot a hideg tárolóban, az aktiv zónában és a reaktor kiégett-fütőelem-tárolójában tételszámlálással, zártsági és felügyeleti vizsgálattal mérjük. A nem roncsoló eljárások, az üzemeltető feljegyzésein, valamint izotópkorrelációs eljárásokon alapuló uránkiégési és plutóniumképződési számitások egészitik ki a méréseket.

6. táblázat

Reaktor

HIDEGTÁROLÓ	RUDAK, KÖTEGEK	NDT
AKTIV ZÓNA	RUDAK, KÖTEGEK	ÜZEMI FELJEGYZÉSEK
KIÉGETT ÜZEMANYAG	RUDAK, KÖTEGEK /gyártott Pu/	U-KIÉGETÉS Pu-KÉPZŐDÉS

A kémiai ujrafeldolgozó üzem bemenő elszámolási tartálya az első mérési kulcspont, ahol a nukleáris anyagot kémiai analitikai eszközökkel meg lehet határozni. A termék mérése éppoly fontos: eredményei az üzem müködésében tükröződnek.

7. táblázat

Ujrafeldolgozó üzem

BEMENET	U-fém, UO_2, Pu /U/Pu/ oldat	ID, COUL, X-ray; ISO
U-TERMÉK	$UO_2/NO_3/_2UF_6$	DT, PT; ISO, IMP
Pu-TERMÉK	$PU/NO_3/_4$, PuO_2	AT, PT, COUL; ISO, IMP
TOK-HULLADÉK		FLUO, TTA-α
HULLADÉKOK VAGY VISSZA-TARTOTT HULLADÉK		FLUO, TTA-α

A plutóniumtárolóknál darabszámlálást, leforrasztást és nem roncsoló eljárásokat használnak biztositéki intézkedésként.

Plutóniumtárolás

Pu-TERMÉK	PuO_2 /$Pu(NO_3)_4$	NDT

A ciklus utolsó területe az urán- és plutóniumgyártó üzem, ahol az urán- és plutónium bemenetet és a kevert oxid tablettákat nedves kémiailag analizálják, az üzemanyag-rudakat és kötegeket nem roncsoló vizsgálattal ellenőrzik.

8. táblázat

Plutónium/urán-gyártó üzem

U-BEMENET	UO_2	G, DT, PT; ISO, IMP
Pu-bemenet	PuO_2, $Pu(NO_3)4$	AT, PT, COUL; ISO, IMP
TERMÉK	OXIDGYÖNGYÖK	- " -
ÜZEMANYAG-RUDAK	TOKOLT TERMÉK	NDT
ÜZEMANYAG-KÖTEGEK	KÖTEGELT RUDAK	NDT
HULLADÉK		FLUO, TTA-α

ANALITIKAI BIZTOSITÉKI LABORATÓRIUM ÉS ANALITIKAI LABORATÓRIUMOK HÁLÓZATA

Az Ügynökség előirányozza, hogy igénybevesz egyrészt egy biztositéki analitikai laboratóriumot, melyet ügynökségi munkacsoport irányit, másrészt az Ügynökséggel szerződésben dolgozó analitikai laboratóriumok hálózatát.

A laboratóriumi hálózat által végzett analizis lehetővé teszi, hogy az Ügynökség az üzemviteli adatok megbizhatóságát ellenőrizze, következésképpen az Ügynökség a felelős azért, hogy a biztositéki analizishálózat megbizhatóságát ellenőrizze.

A hatásos biztositéki minőségellenőrzési programnak teljes ellenőrzés alatt kell állnia. A program természetesen folyamatos, hogy az analitikai hibákat azonnal érzékelni lehessen. Az utóbbi ellenőrzés megkivánja, hogy közvetlen analitikai fejlesztést végezzenek, referenciamintákat készitsenek elő, és az általános biztositéki analitikai munka egy részét megismételjék.

Egy ilyen minőségellenőrző program megalkotását demonstrációs gyakorlatok fogják megelőzni.

Az összehasonlitás egyik célja a különféle analitikai módszerek teljesitőképességének megállapitása. Egyéb célok még a minták előkezelésére irányuló törekvés értékelése, előkészités a szállitásra, a minta stabilizálásának problémái, és az ezt követő kémiai analizis.

Anyag: urán - fém és ötvözetei, U_3O_8, UO_2, UF_6, UNH /szilárd és oldat, UO_2 gyöngy/
oldószer /higitott, tüsitett /spiked/ és a hasadási termékekből elválasztott és
plutónium - fém és ötvözetei, plutóniumdioxid, plutóniumnitrát oldat; és kevert plutónium- és uránoxidok.

Az analizis fajtái: uránkoncentrácio, plutóniumkoncentráció, tóriumkoncentráció, plutónium és urán izotópösszetétele.

Standard eljárások: a minták stabilizálása, mintavétel és a minták reprezentativ volta: és standard referenciaanyag.

AZ EREDMÉNYEK SZABVÁNYOSITÁSA ÉS ÖSSZEHASONLÍTÁSA

Az a tény, hogy egy központi biztositéki laboratórium és az analitikai laboratóriumok hálózata együtt dolgozik, azt igényli, hogy megfelelő kémiai standardok álljanak rendelkezésre. Ezeket nemzetközileg kell érvényesiteni, ami azt jelenti, hogy a NAÜ felügyelete alatt kell kalibrálni. Szükséges az analitikai módszerek kalibrálásának szabványositása, a módszerekben mutatkozó eltérések ellenőrzése, és a rutin müködés megbizhatóságának folyamatos kontrollja.

ÖSSZEGEZÉS

Az atomsorompó-egyezményben foglalt NAÜ biztositékokat a nukleáris üzemanyagciklus létesitményeire alkalmazzák. Ez az INFCIRC/153-ban lefektetett rendszeren alapszik.

A rendszer alkalmazásának az a célja, hogy időben észlelje a nukleáris anyagok jelentős mennyiségének elvonását a békés felhasználástól nukleáris fegyverek vagy más robbanó szerkezetek gyártására vagy más ismeretlen célokra, és a gyors észlelés fennálló kockázatával elriasszon az ilyen lépéstől.

Az üzemeltető adatainak elfogadása vagy elutasitása, beleértve az adatok ellenőrzésére vonatkozó programot is, lényeges tényező az ügynökség ellenőrzési tevékenysége technikai következtetései levonásánál, amint azt az INFCIRC/153 leszögezi.

IRODALOM

1. The Structure and Content of Agreements between the Agency and States required in connection with the Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons, INFCIRC/153
   International Atomic Energy Agency, Vienna 1971
2. Selected Measurement Methods for Plutonium and Uranium in the Nuclear Fuel Cycle, TID-7029 /2nd Ed./ 1972

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/561-573

NAGY ÁRAMU, KIS FESZÜLTSÉGŰ GYORSITÓK

Pető G.
Kossuth Lajos Tudományegyetem, Kisérleti Fizikai Intézet, Debrecen

A nagyfeszültségű tápegységek, ionforrások, targethütő rendszerek teljesitménye és alkalmazási lehetőségei.

Ускорители высокой интенсивности и низкого напряжения
Петэ, Г.

Источники высокого напряжения для ускорителей, источники ионов с большой мощностью, мишени и их применение.

High Intensity, Low Power Accelerators
Pető, G.

High power accelerator power sources, ion sources, target systems and their applications.

A nagy áramu gyorsitók fejlesztését elsősorban nem a magfizika, hanem az ipar, a biológia és orvostudomány területén dolgozó kutatók igénylik. A gyorsitók viszonylag kis épitési /beszerzési/ költsége lehetővé teszi, hogy a felhasználók saját berendezést létesitsenek. A gyakorlati felhasználás eredményei révén a befektetett költségek rövid idő alatt megtérülnek[1].

A nagyenergiáju gyorsitók épitésének egyik melléktermeke a nagy áramu injektorok kifejlesztése, amelynek tapasztalatai felhasználhatók a neutronforrások hozamának növelésére is. A duoplazmatron ionforrás egy ampert megközelitő áramával a 10^{15} neutron/s hozam is elérhető, ha sikerül megfelelő gáztargetet készitени.

A nagy intenzitásu töltött részecskenyaláb, /p,γ/, /d,n/ és más reakciók révén, felhasználható aktivációs analizisre, egyes anyagok felületének, kristályszerkezetének vizsgálatára, ionimplantációra és vékony bevonatok készitésére. A nagy intenzitás különösen jelentős az anyagok sugárkárosodásának vizsgálatában, ami reaktor-fütőelemtokok, kozmikus és fuziós berendezések tervezéséhez szükséges. Nehéz ionokkal a fékezési sugárzás folytonos hátterétől mentes karakterisztikus röntgensugárzás gerjeszthető. A nehéz ionokkal gerjesz-

tett atomok spektrumának tanulmányozása az asztrofizika számára is hasznos adatokat nyujt. A könnyü magokon néhány keV-es energiával létrehozott magreakciók vizsgálatát szintén az asztrofizika, valamint a fuziós kisérletek igénylik. Nagy energiáju töltött részecskenyaláb is előállitható különböző magreakciók révén: a D+D reakcióból 200 keV-en 3 MeV-es, a ^{3}He+D reakcióból 600 keV-en 14,5 MeV-es protonok[18] állithatók elő. /d,n/ reakcióval számos rövid felezési idejü izotóp kapható, igy az orvosi gyakorlatban felhasználható ^{11}C, ^{13}N, ^{15}O is.

A 0,1-10 MeV energiáju töltött részecskenyalábbal nagy intenzitásu, γ-háttér-mentes, monoenergetikus neutronforrást kaphatunk. Széles energiatartomány fogható át a D/d,n/, T/d,n/, Be/d,n/, ^{7}Li/p,n/, T/p,n/, Be/α,n/ stb. reakciók révén. /A reakciókról részletes áttekintést ad a Neutronfizika c. könyv megfelelő fejezete[15]./

A széles neutronenergia-tartomány lehetővé teszi a neutronreakciók gerjesztési függvényének vizsgálatát, ami hasznos segitséget ad a gyorsreaktorok, fuziós berendezések, neutronsugárzásnak kitett felszerelések és aktivációs mérések tervezéséhez. Az /n,p/, /n,α/, /n,T/, és más reakciók révén kiváltott töltött részecskék közvetlenül károsithatják az egyes szerkezeti anyagokat /félvezetőket, szigetelőket/. Igen nagy dózisok esetén a reakciókból felhalmozódott gáz is befolyásolhatja a besugárzott anyag szilárdságát és egyéb tulajdonságait. A jelenlegi ismeretek szerint nem jósolható meg, hogy 10^{22} n/cm^{2} dózis hatására a szerkezeti anyagok milyen károsodást szenvednek a fuziós reaktorokban.

A nagy intenzitásu neutronforrások hazai alkalmazása elsősorban az aktivációs analizis ipari és biológiai területen történő felhasználhatóságát terjesztené ki, de jól hasznositható a neutronradiográfia[19] területén is. A jelenleg használt, maximálisan 10^{11} n/s hozamu források kb. 50 elem[16] kimutatására alkalmasak, a matrixtól függően 10^{-3}-10^{2} mg érzékenységgel. A legelterjedtebb módszer az oxigén meghatározása különböző fémekben /Fe, Ti, Al, Cu, Cs stb./, amihez teljes laboratóriumok kaphatók. A holdkőzetek O, Si, és Al meghatározását is 14 MeV-es neutronokkal végezték[17]. Az ^{16}O/n,p/ reakció nagy küszöbenergiája miatt nem várható, hogy a spontán hasadó ^{252}Cf neutronforrás eredményesen alkalmazható lesz ezen a területen.

Sok esetben jól kihasznalható az aktivációs analizis roncsolás nélküli és kontaktus nélküli volta vagy a neutroncsövek hordozhatósága. A rövid felezési idejü izotópok felaktiválása révén megvalósitható az össszetétel és más paraméterek állandó ellenőrzésén alapuló folyamatszabályozás. Elterjedt a csövekben áramló folyadékok analizise: Se, Ag, I, U és különféle sók meghatározása vizben, kén és más nyomelemek meghatározása olajban. Használják különféle ércek felkutatására és válogatására, bauxit és cement alapanyagok vas-, szilicium- és aluminiumtartalmának meghatározására. Az élelmiszeriparban proteinana-

lizisre alkalmazható, nitrogénmeghatározás révén. Biológiában és orvosi diagnosztikában, növényi, állati és emberi szervezetek O, N, F, Ca, P, Cl, K, Na és egy sor más elem tartalmának meghatározására használják, akár az élő egyedek besugárzásával is. Pl. egy ürhajós szervezetének sulytalanság következtében beálló kalciumvesztesége $\pm$ 2 % pontossággal adható meg. A 2-4 nagyságrendü neutronhozam-növekedés az eddig alkalmazott módszerek pontosságát és érzékenységét növelné, és egyben lehetőség nyilna több más elem kimutatására is. További előnyt jelentene a néhány MeV-es ionnyalábbal kapható széles neutronenergia-tartomány, mivel lehetséges volna az aktivációs módszer szelektivitása és érzékenysége szempontjából legkedvezőbb neutronenergia megválasztása. Az /n,2n/ reakciók révén számos pozitronbomló izotópot lehetnek előállitani, különféle célokra.

Jelenleg a gyorsneutron-terápia igényli a legnagyobb hozamu[7, 13] neutrongenerátorokat. A daganatok belsejében lévő rossz oxigénellátásu sejtek két-háromszor érzéketlenebbek a kis fajlagos ionizációju röntgen- vagy γ-sugárzásra, mint a normális oxigénellátásu sejtek. A gyors neutronok által meglökött, nagy fajlagos ionizációju protonok esetén az érzékenységkülönbség csak 50 %-os. 1000 rad dózis eléréséhez kb. 2.10^{11} neutron/cm^2-es expozició kell, ami 10^{13} n/s hozamu neutrongenerátorral néhány órás besugárzást jelent, figyelembe véve a szükséges kollimátor által megszabott, legalább 2 méteres forrás-test távolságot.

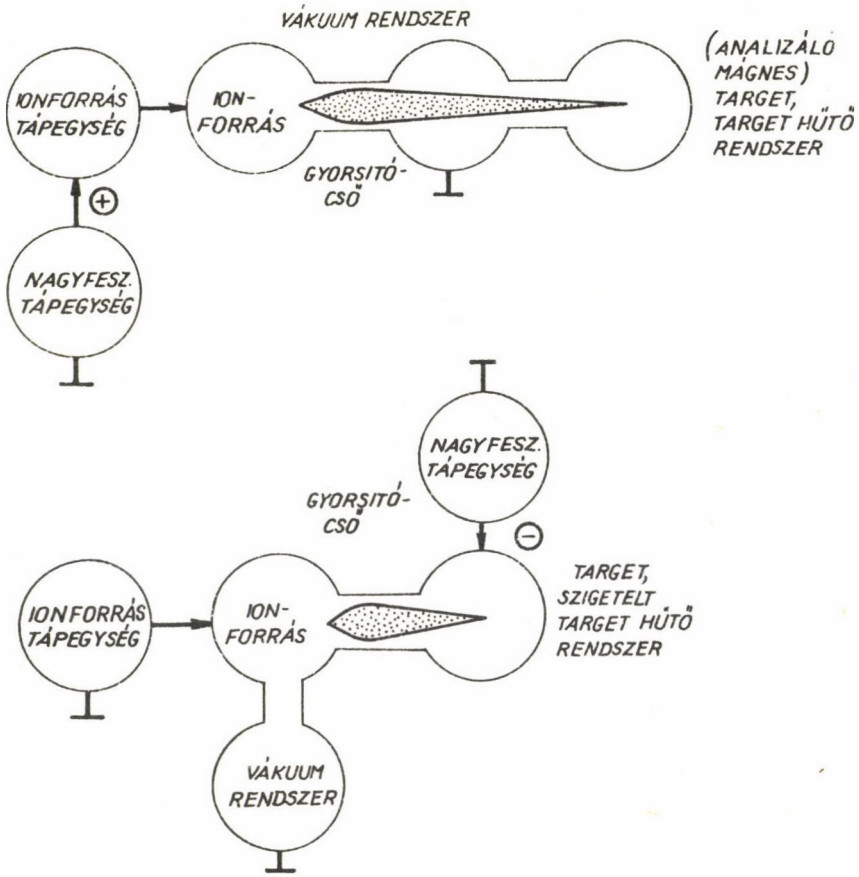
Az alkalmazási területek felsorolását a reaktorvizsgálatok, oktatás, nyomjelzés, geológia, hidrogénmeghatározás és számos más területről vett példával lehetne folytatni, amelyek köre a forrásintenzitások növekedésének függvényében állandóan bővülni fog.

A gyorsitók elvi felépitését az 1. ábra szemlélteti. Az A elrendezés minimális target-minta távolságot biztosit. Előnyös a targethütés szempontjából, de az ionforrás táplálását a nagyfeszültségen kell megoldani. A B elrendezés az ionforrás tápegységének és a vákuumrendszernek elhelyezése szempontjából előnyös. A nagyfeszültségen lévő target csak viszonylag nagy target-minta távolságot enged meg, és a targethütés is körülményes. Főleg a nagyobb gyorsitók injektoraiban és neutroncsövekben alkalmazzák. Az utóbbiaknál a vákuumrendszer teljesen zárt. A zárt rendszer megszünteti a tricium kezeléséből eredő sugárvédelmi problémákat. A neutroncsöves elrendezéssel kis méretü, hordozható és könnyen üzemeltethető neutronforrások készithetők, amelyek időben állandó hozama megközeliti a stabil berendezések hozamát.

A gyorsitók teljesitményének növelése csak a nagyfeszültségü tápegység, ionforrás, gyorsitócső és vákuumrendszer, valamint a targethütés párhuzamos fejlesztésével érhető el. Jelenleg az 1 MeV alatti energiatartományban előállitható több száz milliamperes ionnyaláb kihasználását a targethütés, mig 1 MeV felett a gyorsitócső korlátozza.

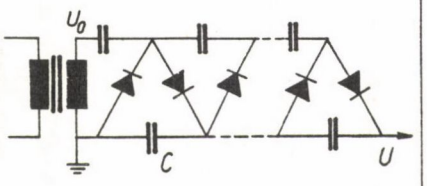
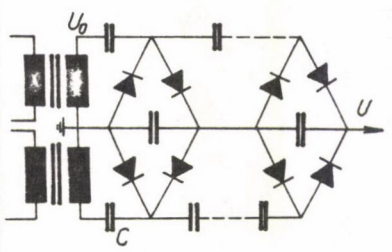
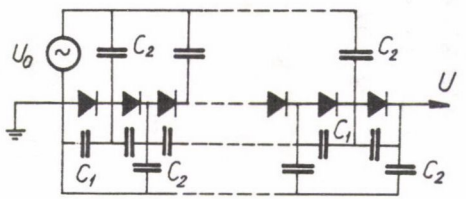
NAGYFESZÜLTSÉGŰ TÁPEGYSÉGEK

A Greinacher[2], majd Cockcroft és Walton[3] által kifejlesztett tápegység feszültsége és teljesitménye nagymértékben megnövekedett a félvezető diódák fejlődésével és különféle kapcsolási módositásokkal. A leggyakrabban használt elvi kapcsolásokat és főbb jellemzőiket a 2. ábra foglalja össze. Az eredeti kaszkádelrendezésben a feszültség növelését a fokozatok számának köbével növekvő feszültségesés korlátozta 1 MV alá. Az elrendezés módositásából eredő szimmetrikus kaszkádnál a feszültségesés egynegyedére csökken, igy elérhető a 4 MV-os gyorsitó feszültség[4] is. Ezekben az elrendezésekben többnyire szelén egyenirányitót alkalmaznak, ami maximum 20 kHz-es tápfeszültséget tesz lehetővé, de jól birja a tulfeszültséget és a tuláramot. A sziliciumdiódák megjelenésével lehetővé vált a párhuzamos táplálásu kaszkád, vagy más néven dinamitron megvalósitása[5], amely 100 kHz körüli frekvencián dolgozik. A kapcsolás előnye, hogy a feszültségesés csak lineárisan növekszik a fokozatok számával. Tandem változatával[30] 10 MeV protonenergiát is elértek.



1. ábra

A gyorsitók főbb egységeinek elvi elrendezései

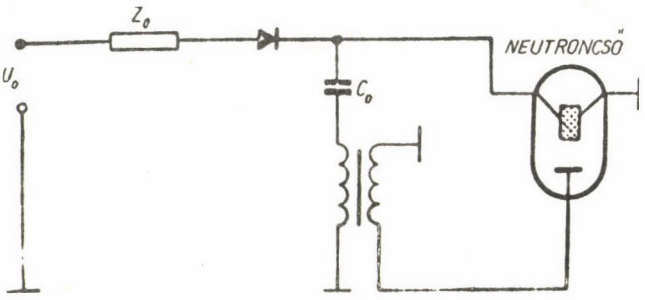
ELVI KAPCSOLÁS	KASZKÁD	SZIMMETRIKUS KASZKÁD	PÁRHUZAMOS TÁPLÁLÁSU KASZKÁD /DINAMITRON/
			
IDEÁLIS KIMENŐ-FESZÜLTSÉG	$U = 2NU_o$ N = a fokozatok száma U_o = tápfeszültség	$U = 2NU_o$	$U = U_o \frac{N}{1 + \frac{4C_1}{C_2}}$
HULLÁMOSSÁG	$\delta U = \frac{I}{2fC} N/N+1/$ f = frekvencia, I = terhelőáram	$\delta U = \frac{I}{2fC} N$	$\delta U = \frac{I}{2fC_2}$
FESZÜLTSÉGESÉS	$\Delta U = \frac{I}{fC}(\frac{2}{3} N^3 + \frac{N}{3})$	$\Delta U = \frac{I}{fC} (\frac{N^3}{6} + \frac{N}{3})$	$\Delta U = \frac{I}{fC_2} \cdot \frac{N}{1 + \frac{4C_1}{C_2}}$
ÜZEM FESZ.TARTOMÁNY	0,1 - 1 MV	0,1 - 2,5 MV	0,7 - 5,7 MV
MAX. ÁRAM	~1 A	~200 mA	~20 mA
IONÁRAM	115 keV 0,54A H^+	600 keV 350 mA $H^+ + H_2^+$	4 MeV 5 mA H^+ tandem: 10 MeV 150 µA H^+
IRODALOM	22,32 37	4,6,25,26,27,31	5,23,24,28,29,30

2. ábra

A kaszkád-tipusu gyorsitók és főbb jellemzői

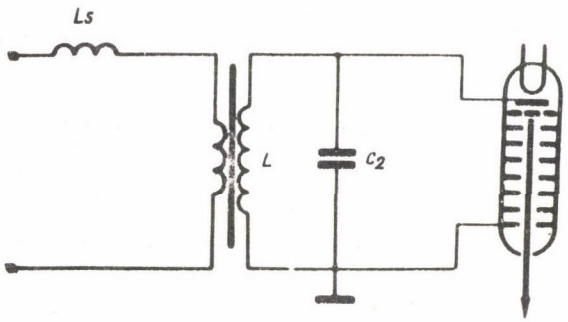
A szigetelt vasmagu transzformátorral[47] /ICT/ sikerült megoldani a nagyfeszültségü transzformátorok szekunder tekercse és vasmagja közt fellépő nagy feszültségkülönbség szigetelését. A vasmag szekunder tekercset tartó része egymástól elszigetelt szakaszokra van osztva, amelyeken egy-egy tekercs helyezkedik el. A tekercseket egyenirányitók kötik sorba. 40 darab 25 kV-ot adó tekercs sorbakötésével 1 MV-os gyorsitófeszültséget értek el. Megfelelően méretezett tápegység egy amperrel is terhelhető.

Az impulzusüzemü nagyfeszültségü tápegységek olcsóbbak, mivel a kapcsolási elemek száma kevesebb. Egyenirányitásra a gyorsitócsövet használják. Neutrongenerátorok és neutroncsövek táplálására alkalmazzák az impulzustranszformátort a 3. ábra szerinti elrendezésben[33]. Hasonló elven müködik a novoszibirszki Magfizikai Intézetben Abramjan[20] által kifejlesztett transzformátor tipusu gyorsitó. Elvi kapcsolása a 4. ábrán látható. Az ipari tipusoknál a transzformátort közvetlenül a hálózatról táplálják. Az energiastabilizásást a terhelő áram szabályozásával biztositják. A kereskedelemben kapható[1] transzformátor tipusu gyorsitók elősorban elektrongyorsitásra készülnek. Háromfázisu változatukkal 90-95 %-os hatásfok érhető el, igy akár fémek olvasztására is gazdaságosan használhatók. Az ELIT-1,5 tipus felépitését és legfontosabb adatait az 5. ábra foglalja össze. A gyorsitó 0,8 MeV-es változatának szabadalmát egy amerikai cég is megvásárolta[34], és gyártását hamarosan megkezdi. A transzformátor tipusu gyorsitó lényeges átalakitás nélkül protongyorsitásra[20] is használható: 1,2 MeV-es protonimpulzusokat 50 Hz ismétlődési frekvenciával, 45 mA-es csucs- és 3,5 mA-es átlagárammal állitottak[21] elő. Az energiaszórás $\pm$ 0,5 %-os volt. Az impulzusok hossza 10^{-8} - 10^{-5} s tartományban változtatható. Remélhető[21], hogy a méretek további csökkentése mellett is a teljesitmény és a feszültség tovább növelhető, akár 10 MV-ig, elérve a 0,1 %-os energiastabilitást. Az ionáramot csak a gyorsitócső terhelhetősége korlátozza, igy várható, hogy a különféle alkalmazási területeken gyorsan elterjed, mint olcsó pozitivion-gyorsitó is.



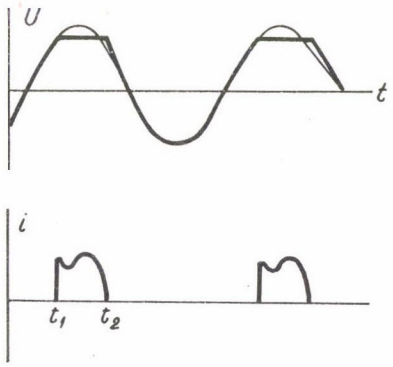
3. ábra

Impulzustranszformátorral[33] táplált neutroncső elvi kapcsolása



4.a/ ábra

A transzformátor tipusu gyorsitó elvi kapcsolása[21] /C_2 a szórt kapacitás/

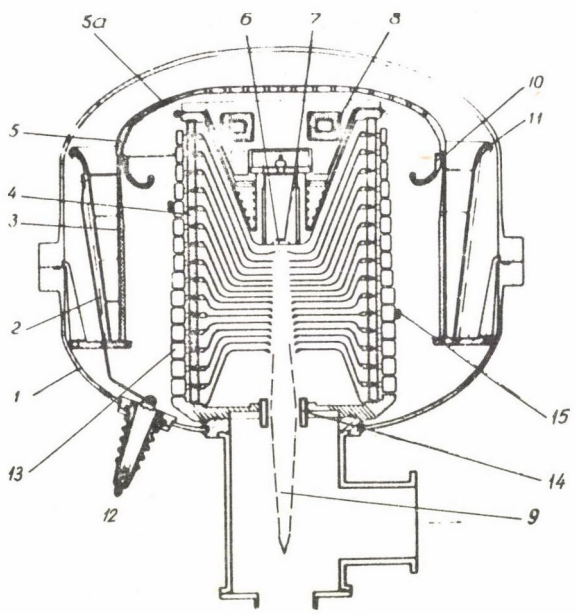


4.b/ ábra

A gyorsitófeszültség és az ionáram időbeni váltzás

5. ábra

Az ELIT-1,5 transzformátor tipusu gyorsitó[21] felépitése



1-nagynyomásu tartály, 2-primer tekercs, 3-szekunder tekercs, 4-gyorsitócső, 5.·és 5.a-nagyfeszültségü elektród, 6-katód, 7-katódrács, 8-injektorszabályozó rendszer, 9-elekronnyaláb, 10-11-védőernyők, 12-primer feszültség bemenet, 13-kapacitást kiegyenlitő gyürük, 14-fókuszáló lencsék, 15, hütés.

Az ELIT-1,5 gyorsitó maximális energiája 1,5 MeV, átlagteljesitménye: 2 kW, maximális árama: 100 A, impulzushossza 5.10^{-8} - 3.10^{-6} s, impulzusteljesitménye 150 MW, ismétlődési frekvenciája 100 Hz. A gyorsitó 0,8 m hosszu, 1 m átmérőjü, 500 kg sulyu.

A rövid impulzusokat adó laser ionforrásu neutrongenerátorokhoz a gyorsitófeszültséget a laserrel szinkronizált Marx-generátor is szolgáltathatja[51]. A 6. ábra szerinti elrendezésben a kondenzátorokat párhuzamosan töltve, sorosan kisütve nagyfeszültségü impulzus állitható elő. Az elrendezés soros kap-

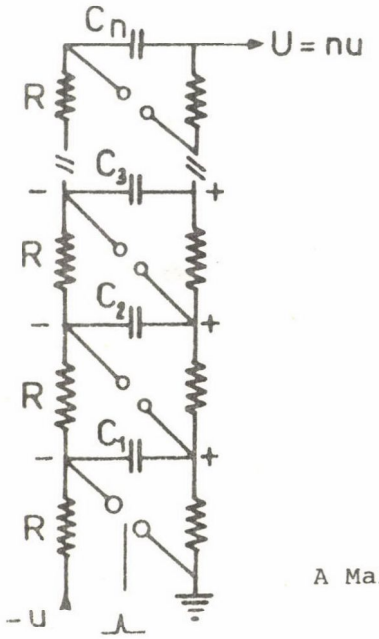
csolását a szikraközök biztositják. Megfelelő számu fokozattal 18 MV-os, 0,5 MJ-os röntgen-flash-generátort is épitettek[51].

Valamennyi nagyfeszültségü tápegység mérete csökkenthető nagy nyomásu gáz- vagy olajszigetelés alkalmazásával. Leggyakrabban nyomás alatti generátorokat épitenek, de egyszerü kezelésü és olcsó szabadtéri gyorsitók az utóbbi években is készültek[32] a MV-os tartományban. Ha a nagyfeszültségü tápegységet a gyorsitótól függetlenül épitik, 1 MV-ig alkalmaznak kábelt a feszültség továbbitására.

IONFORRÁSOK

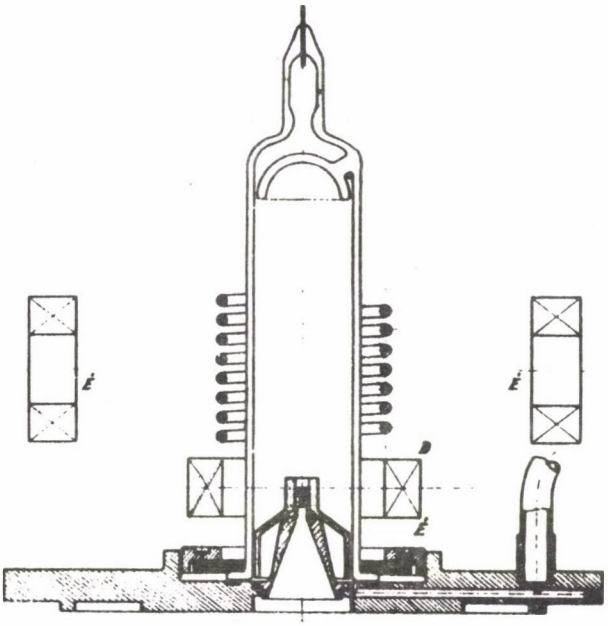
Jelenleg a legelterjedtebb tipusu *rádiófrekvenciás ionforrással*[35,45,46] néhány milliamper H^+ ionáram érhető el. Felépitését a 7. ábra szemlélteti. A kb. 0,1 literes hőálló üvegből készült ballont 10^{-1} - 10^{-4} Hgmm nyomásu gáz tölti ki. Az ionforrás oszcillátora általában 15-450 MHz frekvenciatartományban dolgozik, teljesitménye 40-700 W közt van. Az energia betáplálása indukciós vagy ritkábban kapacitiv csatoláson keresztül történik. Az oszcilláló elektronok random ütközések révén tesznek szert az ionizációhoz szükséges energiára. Az anódot és a katódot is kvarcsapka védi, mivel a fémfelületeken négy nagyságrenddel nagyobb a rekombináció valószinüsége. Az inhomogén és axiális mágneses tér növeli az ionáramot, és javitja a ballon élettartamát is. Az RF ionforrások előnye a nagy atom-ion arány, igy kis gyorsitófeszültségeken és analizáló mágnes nélkül is használhatók.

Nagyságrenddel nagyobb ionáram érhető el a *Penning-tipusu ionforrással.* Elvi felépitése a 8. ábrán látható. A hengeres anód és a két katód által lezárt 10^{-2} - 10^{-4} Hgmm nyomásu gáztérben jön létre a kisülés. Az axiális mágneses tér hatására az elektronok hosszu uton érik el az anódot, igy ionizációs hatásfokuk jó. Hideg- és izzókatódos változatokat egyaránt használnak. A molekulaionok aránya nagy, ezért csak 240 kV feletti gyorsitófeszültség esetén célszerü használni, amint ez a 18. ábra hozamgörbéiből is leolvasható. Nehéz ionok előállitására is főleg Penning-tipusu ionforrásokat használnak[36]. A szilárd anyagokat párologtatással, porlasztással vagy gáz halmazállapotu vegyület /fluoridok/ formájában juttatják a gáztérbe.



6. ábra

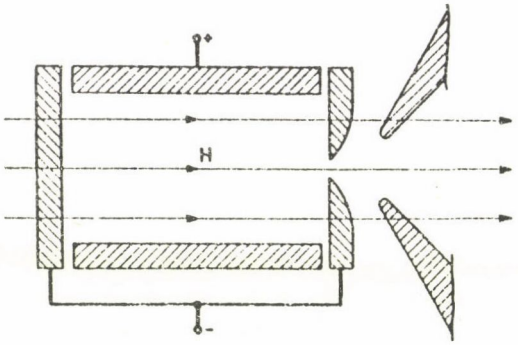
A Marx-generátor elvi felépitése



7. ábra
Rádiófrekvenciás ionforrás[35]

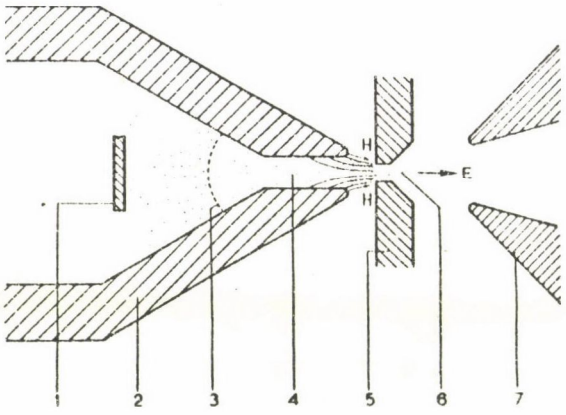
Az ionforrás tápláláshoz szükséges teljesitmény 0,5 - 20 kW közt változik. Az anódfeszültség 0,3 - 10 kV, az anódáram 1-10 A tartományba esik. A 13. ábrán látható neutroncső Penning-tipusu ionforrásával 30 mA-es deutériumnyalábot állitottak[9] elő.

Az ionáram további nagyságrenddel növelhető meg a *duoplazmatron ionforrás* alkalmazásával. A 9. ábra szerinti elrendezésben az izzókatód és az anód közti térben kisülést hoznak létre, amit a közbenső elektród nyom össze elektromos és mágneses uton. /A kettős módból ered az ionforrás elnevezése./ Az elektromos összenyomás a megfelelően választott közbenső elektródpotenciállal érhető el. Ha a közbenső elektród negativ a katód oldalán lévő plazmához képest, félgömb alaku elektromos kettősréteg alakul ki az anód- és katódplazma közt. A kettősrétegen éles potenciálugrás jön létre, igy a katódból kiinduló elektronok gyorsulnak, és fókuszálódnak az anódtérbe, ahol sürü plazma alakul ki. A mágneses összenyomás az anódtartományban kialakitott axiális inhomogén mágneses térrel érhető el, amelynek maximális értéke az emissziós nyilás közelében van. A nagy plazmasürüségek miatt kis átmérőjü emissziós nyilás is elegendő, ami jó /80-90 %-os/ gázhatásfokot eredményez. Kis gáznyomás mellett nehezebb elemekből is többszörösen ionizált nyalábot lehet előállitani[36,48]. A nagyintenzitásu nyalábok előállitása 20 kW körüli teljesitményt igényel, ezért a legnehezebb technikai problémát az ionforrások hütése okozza. Leggyakrabban viz- vagy freonhütést alkalmaznak, de a hütési problémák megkerülésére hét párhuzamos ionforrással müködő neutrongenerátort is épitettek. Az ionáram tovább növelhető a 10. ábrán látható négyelektródos douoplazmatronnal[38]. Az anód mögött lágyacél reflektáló elektródot helyeztek el, aminek hatására az elektronok oszcillálnak a katód és a reflektáló elektród között. Az elektronoszcilláció jó ionizációs hatásfokát kihasználva Plesivcev és munkatársai[39] fókuszálás nélkül maximálisan 4 A-es hidrogén áramot értek el. A 115 keV-es, 50 mm átmérőjü H^+ ionnyaláb a katódtól 1,6 méterre 540 mA volt. A technikai nehézségeket jól szemléltetik a tápegységek adatai: a gyorsitó feszültséget 150 kilovoltos, 6 amperes tápegység biztositotta. A teljes rendszer táplálásához kb. 1,5 MW szükséges.



8. ábra

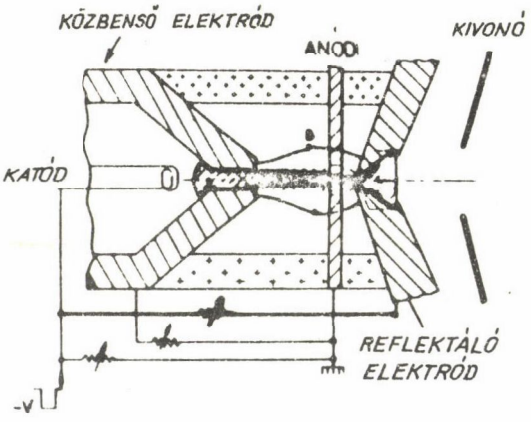
A Penning-tipusu ionforrás elvi felépitése



9. ábra

A duoplazmatron ionforrás elvi felépitése

1-katód, 2-közbenső elektród, 3-elektromos kettősréteg, 4-anódplazma, 5-anód az emissziós nyilással, 6-kinyuló plazma, 7-gyorsitó elektród.



10. ábra

A négyelektródos duoplazmatron elvi felépitése

VÁKUUMRENDSZER, GYORSITÓCSŐ

Plesivcev és munkatársai[39] 25000 l/s szivóteljesitményü olajdiffuziós szivattyut használtak. Más, hasonló rendszerekben krioszivattyut, Ti-ion-szivattyut[50], Hg-diffuziós szivattyut[27], nehéz ionok esetében turbomolekuláris szivattyut[52] alkalmaznak. A nagy áram miatt nehéz a nyalábot fókuszálni; a maradék gázokon is nagyszámu ütközés következik be. A szóródott ionok porlasztják az elektródokat, és nagy intenzitásu szekunder elektronnyalábot keltenek. A szekunder elektronok átütéseket eredményezhetnek, és nagy röntgenhátteret okoznak. A röntgenháttér zavarja a méréseket, neheziti a sugárvédelmet, és 10 r/h felett a szigetelő gáz átütési szilárdságát is csökkenti.

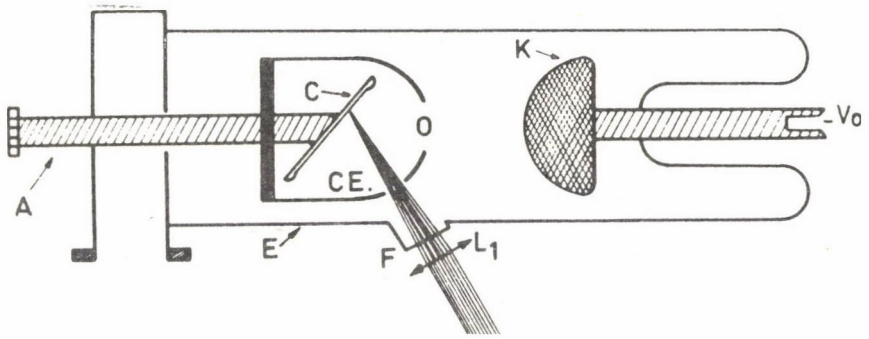
A 100-200 keV-es neutrongenerátorok esetén a gyorsitó teret legtöbbször egymástól 10-20 mm-re lévő elektródpáron hozzák létre[9,39]. A targettávolságot ugy választják meg, hogy a divergens nyaláb lefedje a target felületét.

1 MV-ig leggyakrabban az inhomogén terü Pierce-geometriáju[50] gyorsitócsövet használják, mig 1 MeV felett homogén terü[27] gyorsitócsöveket alkalmaznak. A nagy áram miatt két-háromszoros biztonsági faktorral számolnak. Az elektród kiképzésével leárnyékolják a szigeteléseket, a fémbevonatok képződésének megakadályozására. A szekunder elektronokat az elektródokba épitett permanens mágnesekkel téritik[49] el. A maximális gonddal készült gyorsitócsövek is csak 5 mA körüli áramot tesznek lehetővé.

LASER IONFORRÁS ÉS NEUTRONFORRÁS

Elsőnek Baszov[41] hivta fel a figyelmet arra, hogy nagy energiáju lasernyaláb fókuszálásával sürü plazma kapható. Ha a lasernyaláb által néhány köbmilliméteres térfogatba bevitt energia eléri a 10^{14} erget, tricium és deutérium fuziója révén nagy intenzitásu neutronimpulzusok állithatók elő. A számitások szerint[42] egy ilyen rendszer átlagos neutronhozama 4.10^{18} n/s lehet, 10 s ismétlődési frekvenciával. A jelenlegi kisérleti eredmények[43] még lényegesen kisebb értéket adnak: kb. 10^{5} neutron/impulzust.

Kisebb energiáju laserimpulzus szükséges ionforrások készitéséhez, amelyekkel többszörösen ionizált nehéz ionok is kaphatók. 10^{12} W/cm^2-es impulzussal már Al^{11+}, 10^{14} W/cm^2-es ipulzussal U^{60+} is előállitható[36].

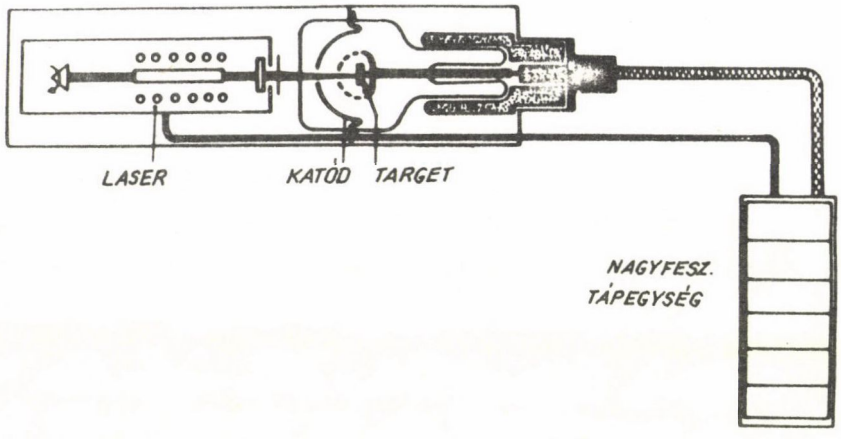


11. ábra

A laser ionforrásu neutrongenerátor[40]

C-deutériumot tartalmazó titánréteges ionforrás hátlap; CE-ekvipotenciális expanziós kamra, K-deutériumot tartalmazó titánréteges target hátlap, O-kivonó nyilás, E-vákuumkamra, F-ablak, L_1-a lasernyalábot fókuszáló lencse, A-mozgatható tengely

A 11. ábra laser ionforrásu impulzusüzemü neutrongenerátor elvi felépitését mutatja[40]. 33 MW-os, 40 ns-os rubinlaser-impulzusokkal, D+D reakcióval 10^{7} neutron/400 ns-os impulzusokat kaptak, 120 kV-os gyorsitófeszültség mellett.



12. ábra

Laser ionforrással tervezett neutroncső[40]

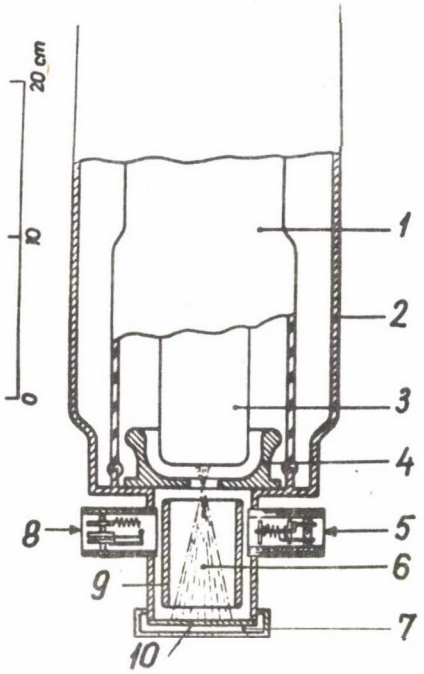
A 12. ábrán látható a tapasztalatok alapján tervezett neutroncső, amelynek várható átlagos hozama 10^{10} n/s, 10 impulzus/s ismétlődési frekvencia mellett.

TARGETHŰTÉS

A 200 keV-es, 100 mA-es, vagy 4 MeV-es, 5 mA-es nyaláb a targetet 20 kW-tal terheli. Az ismert módszerekkel a targethütés kb. 10 kW/cm^2-ig oldható meg, nagyobb nyalábteljesitmény esetén az ionáram csak a targetfelület növelésével vagy ablak nélküli gáztarget alkalmazásával használható ki.

A 14. ábrán látható targethütés jól bevált[8,10] 1 kW/cm^2 terhelésig, mivel a molibdén vagy réz targethátlapot a hütőviz közvetlen éri. A leggyakrabban használt hütőfolyadék a viz, de alkalmaznak higanyt és nátriumot is. Nagyfeszültségen lévő targetnél olajhütés használható. A targetfelület növelhető a 15. ábra szerinti VVV k képzéssel[9], igy 2 kW/cm^2-es terhelés is megengedhető. A 16. ábrán látható forgó targettel[11] is lényegében a targetfelület növelhető meg: a percenként 1000-2000-es fordulatszám mellett a nyaláb 350 cm/s sebességgel seper végig a targeten, igy a target hőkapacitása a teljes nyalábenergiát fel tudja venni. Hasonló eredmény érhető el a nyaláb elektrosztatikus vagy mágneses mozgatásával. A módszer hátránya, hogy a targetfolt kiterjedt vagy változó helyü, és a szórt nyaláb okozta háttér is megnövekszik.

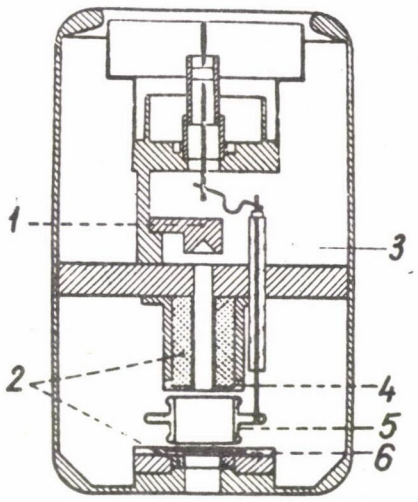
A 14 MeV-es neutronok előállitására használt fém-triciumtargetek élettartama erősen függ a targethütéstől[15]. A titán 200°C felett leadja a megkötött triciumot. Az erbiumtargetek hőállósága a legjobb[12], mivel 300°C-on is csak 20 %-os triciumveszteség lép fel. Kedvező hütésü és jó minőségü forgó targetek esetén elérhető[11] a 400 mA.h hozamu felezési töltés is. A legjobb hütés mellett is fellép a triciumveszteség a nyalábból, a targetbe beépülő deutérium hatására. 150 keV bombázó energia felett a triciumveszteség csökkenthető a targetre párologtatott vékony aluminiumréteggel. A triciumutánpótlás egyik módja a nyalábba kevert tricium bebombázása a targetbe. Főleg neutroncsövekben alkalmazzák. A 13. ábrán látható, 50 % deutérium és 50 % tricium keverékkel müködő neutroncsővel néhány száz órán keresztül elérhető a 10^{12} n/s hozam is.



13.a/ ábra

10^{12} n/s hozamu neutroncső[9] felépitése

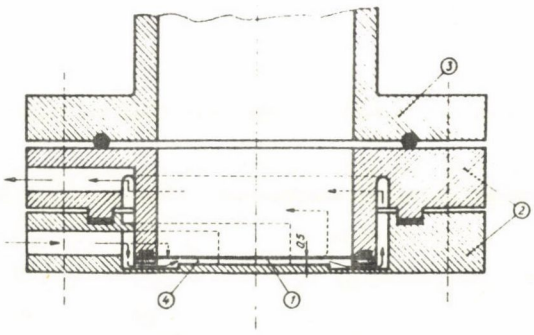
1-szigetelés, 2-fémtok, 3-ionforrás, amelynek részletes felépitése az ábra b/ részén látható, 4-gyorsitó elektród, 5-nyomásszabályozó, 6-ionnyaláb, 7-vizhütés, 8-ionizációs vákuummérő, 9-szekunderelektron-visszatartó elektród, 10-target



13.b/ ábra

A neutroncső Penning-tipusu ionforrása

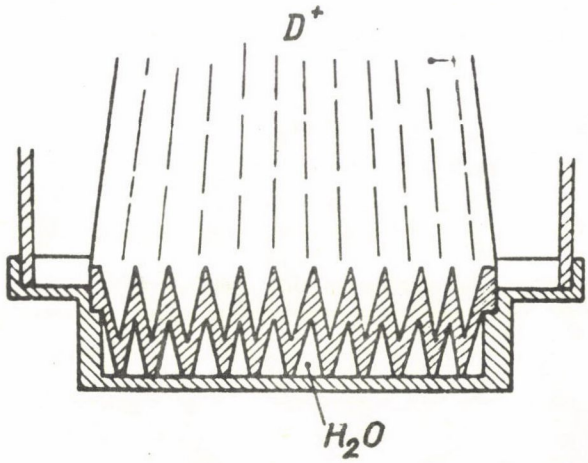
1-elektronkollektor, 2-permanens mágnesek, 3-anódfeszültség bevezetése, 4. és 6-katód, 5-anód



14. ábra

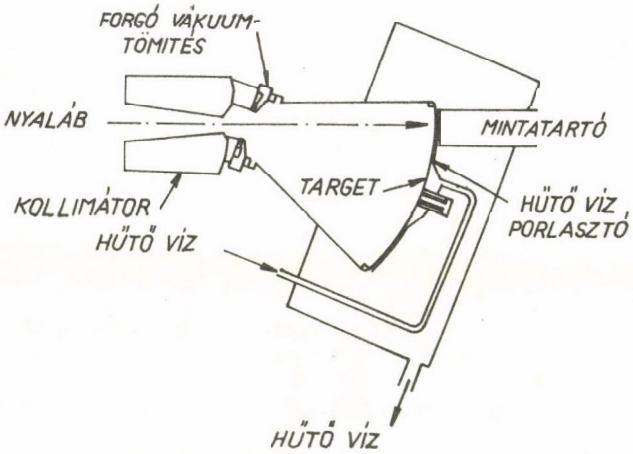
1 kW/cm^2-ig alkalmazható targethütés[8]

1-targetlemez, 2-targettartó, 3-vákuumcsatlakozás, 4-hütővizfilm



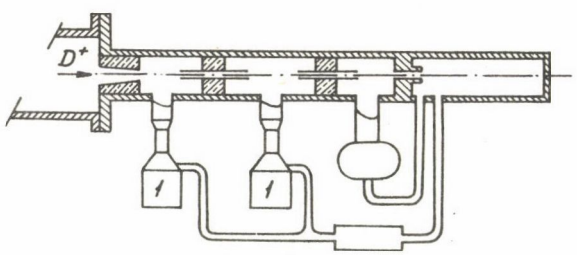
15. ábra

VVV kiképzésü target[9]



16. ábra

Forgó target[11]



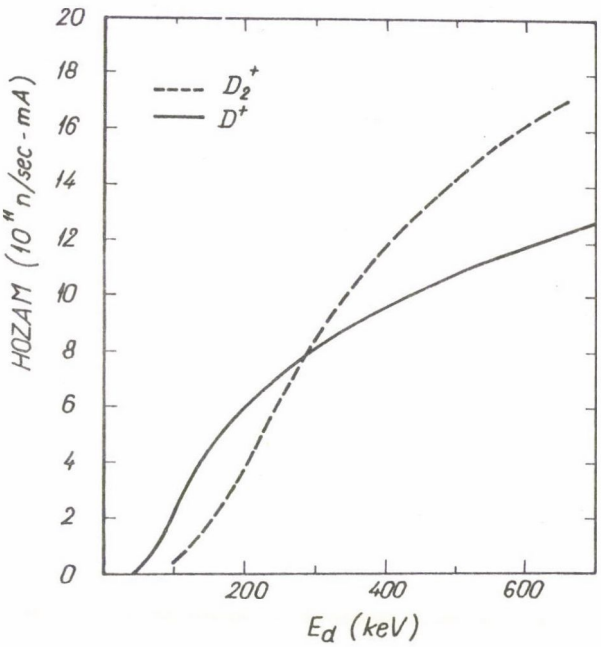
17. ábra

Nyomásejtő kamrákon keresztül csatolt gáztarget-elrendezés[13] zárt rendszerü Hg-diffuziós szivattyukkal[1]

A tricium belebombázásának az a hátránya, hogy a $T+T \rightarrow {}^4He + 2n$ magreakcióból folytonos energiaeloszlásu neutronháttér keletkezik. A másik lehetőség a triciumutánpótlásra a palládium hátlapu target[53] alkalmazása. A szokásos titánréteges targetet palládium alaplapra készitve, a hütés szabályozásával a target mögötti gáztérből triciumot juttathatunk a titánrétegbe, s ez időben állandó neutronhozamot biztosit.

A fém-tricium targetekben a nyaláb elsősorban a nehezebb fématomokon fékeződik, ezért a hozam kicsi: 10^7-10^8 n/s.μA. A kedvezőbb összetételü nehézjégtarget csak D+D neutronforrásul szolgálhat. A jég rossz hővezetése miatt terhelhetősége kicsi, és ez a target forgatásával sem javitható lényegesen.[18] Gáztargeten a hozam közel egy nagyságrenddel nagyobb. Az ablak még nagyobb energiáknál is korlátozza a nyaláb teljesitményét. Remélhető, hogy forgó gáztarget alkalmazásával[54] 3 MeV-es, néhány milliamperes nyaláb még kihasználható lesz. Kisebb energiáknál csak ablak nélküli gáztarget készithető,[13,14] amelynek egy nemrég közölt változatát[13] a 17. ábra mutatja. A gáztargetekben lévő triciumot is gyorsan felhigitja a nagy intenzitásu deutériumnyaláb, igy a targetek élettartama nem sokkal jobb, mint a fém-tricium targeteké, de egy ampert megközelitő áramot is lehetővé tesznek. A 18. ábrán közölt hozamgörbék szerint 1 A-es, 400 keV-os nyalábbal a 10^{15} n/s is elérhető. A gáztarget használata során keletkezett nagy mennyiségü D+T gázkeverék izotópelválasztás utáns ismét felhasználható.

Várható, hogy az 1973-as konferenciákon az épitők már az üzemeltetési tapasztalatokról és az elért hozamokról számolnak be, és ezt követően - reméljük - a hazai kutatók számára is elérhetők lesznek a rekordteljesitményeket megközelitő gyorsitók.



18. ábra

A T/d,n/^{4}He reakció hozamgörbéi gáz-target esetén[13]

IRODALOM

1. *E.G.Komar*, Атомная Энергия 31 /1971/ 426 és Proc. 4th Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva 6-16 Sept. 1971, Vol 14. 183
2. *N.Greinacher*, Bull. Schweiz. Elek. Ver. II. 59. /1920/
3. *J.D. Cockcroft, E.T.S. Walton*, Proc.Roy.Soc. /London/ A129 /1930/ 477
4. *G. Reinhold, K. Truempy, J. Bill*, IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-12. No.3. /1965/ 288
5. *M.R. Clenand, P. Farrell*, ugyanott, 227
6. *G. Reinhold, R. Minker, H. Adler*, ugyanott, 270
7. *A.A. Fleischer* et al. ugyanott, 262
8. *J. Kas, D. Novák*, Nucl. Instr. Meth. 99 /1972/ 359
9. *O. Reifenschweiler*, Proc. 1st Symp. Neutron Dosimetry in Biology and Medicine. Neuherberg/München, May 15-19, 821 /1972/
10. *P.R. Hanley* et al. IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-14, No.3. /1967/ 933
11. *R. Booth*, ugyanott 938
12. В.И. Стрижак и др. Атомная Энергия, 28 /1970/ 249
13. *C.A. Kelsey* et al., Proc. 1st Symp. Neutron Dosimetry in Biology and Medicine. Neuherberg/München, May 15-19, 811 /1972/

14. *L. M. Lidsky* et al., IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-14, No.3. /1967/ 945
E.G. Bilpuch et al., EUR 2641 /1965/
15. *Kardon B., Koltay E., Makra Zs.*, Neutronfizika, Akadémiai Kiadó, Bp., 1971, 80-111
16. *A.Sz.Stany* et al., Proc. Uses Atomic Energy, Geneva 6-16 Sept. 1971, vol. 14. 182 /1971/
17. *W.D.Ehdman*, Proc. Apollo 11 Lunar Sce. Conf. 2.k, 1071 /1970/
18. *D.A. Bance*, Proc. 3rd Conf. Accelerator Targets Designed for Production of Neutrons, Liège Sept. 18-19, 1967. 181. EUR 3895 /1968/
19. *Medveczky L.*, Izotóptechnika, 16 /1973/ 5
20. Е.А. Абрамьян и др., Атомная Энергия, 20 /1966/ 385, 22 /1967/ 400, 29 /1970/ 346
21. *E.A. Abramyan*, IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-18 /1971/ 447
22. *L.L. Reginato, B.H. Smith*, IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-12 /1965/ 274
23. *M.R. Cleland, P.R. Hanley, C.C. Thompson*, IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-16 No.3. /1967/ 113
24. *C.C.Thopson, M.R. Cleland*, ugyanott, 124
25. Б.И. Албертинский и др. ПТЭ. No. 3 /1971/ 43
26. *J. Seitz* et al., Helv. Phys. Acta, 33 /1960/ 977
27. *G. Reinhold* et al., IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-14. No.3. /1967/ 145
28. *A.W. Haberl, A. Taylor*, ugyanott, NS-16 /1969/ 152
29. *A. Taylor*, ugyanott, NS-18 /1971/ 79
30. *P.R. Hanley, M.R. Cleland, C.F. Mason*, ugyanott, NS-16 /1969/ 90
31. *G. Reinhold, K. Truempy*, ugyanott, NS-16 /1969/ 117
32. *G. Reinhold* et al., ugyanott, NS-14 /1967/ 135, NS-18 /1971/ 92
33. Г.И. Кирянов, Радиационная Техника, 1 /1967/ 177
34. Physics Today, December /1972/
35. *Nagy J., Gombos P.*, Atomki Közlemények, 4 /1962/ 4
36. *J.R.J. Benett*, IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-18 /1971/ 55
37. *Bornemissza-Pauspertl P.*, Atomki Közl. 7 /1965/ 47
Berecz I. Papp I. Atomki Közl. 4 /1962/ 3
38. Г.А. Демирханов и др. ПТЭ. No.2. /1964/ 19
39. Н.В. Плешивцев и др. ПТЭ. No.6. /1967/ 23
40. *M. Rabeau*, CEA-R-4273 /1972/
41. *N.E. Basov* et al., Conf. intern. d'électronique quantique, Dunod, Paris, 2k. 1373 /1964/
42. *R.M. Brugger*, Nuclear Technology, 15 /1972/ 14
43. *M.J. Lubin* et al. Sci. Amer. 224 /1971/ 21
44. *C. Bourabier* et al., Phys. Letters, 23 /1963/ 236
45. *E. Pásztor*, Isotopenpraxis, 3 /1967/ 259
46. *Z. Szabó*, Nucl. Instr. Meth. 78 /1970/ 199

47. High Voltage Engineering Corp. és Applied Radiation Corp. Nucleonics, 18 No.8. /1960/ 54
48. *R.L. Laubert, N. Wotherspoon,* IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-12 /1965/ 282
49. *J.G. Triup,* Nucl. Instr. Meth. 28 /1964/ 10
50. *C.R. Emigh, E.A. Meyer, D.W. Mueller,* IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-16 /1969/ 46
51. *K.R. Prestwich, D.L. Johnson,* IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-16 /1969/ 64
52. *C. Fermiot* et al., ugyanott, NS-14 /1967/ 151
P.D. Goode, Nucl. Instr. Meth. 92 /1971/ 447
53. *F.F. Haywood, H.E. Banta, Z.G. Burson,* IEEE Transact. Nucl. Sci., NS-18 /1971/ 802
54. *F.S. Williamson,* EUR-3895. 165. /1968/

Beérkezett 1973. március 20.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/ 578-583

AZ IONIZÁLÓ SUGÁRZÁS ÁLTAL LÉTREHOZOTT DNS-"SINGLE-STRAND" TÖRÉSEK ÉS HELYREÁLLITÁSUK E.COLI K12-BEN

Hernádi F.*, Gábor R.*, Csongor J.**
*Debreceni Orvostudományi Egyetem Gyógyszertani Intézete, Debrecen
**Debreceni Orvostudományi Egyetem Kórélettani Intézete, Debrecen

15 kiloraddal való besugárzás lényegesen megváltoztatja a DNS ülepedési profilját. A baktériumtörzsnek hatásos repairrendszere van, minthogy 1 órán belül helyreállitotta a töréseket. Megfelelő anyagcsereállapot elősegitette, hidroxiurea megakadályozta a törések helyreállását.

Вызывание ионизирующим излучением и восстановление "single-strand" переломов молекул ДНК в бактериях E.coli K12
Хернади, Ф., Габор, Р., Чонгор, Й.
Облучением с дозой в 15 крад существенно изменяется осаждение ДНК. Бактериальное племя владеет эффективной восстанавливающей системой, которая восстановила перелом в течение 1 часа. Подходящее метаболическое состояние содействовало, а применение гидроксиуреи препятствовало восстановлению.

Incidence and Repair of X-Ray Induced Single Strand Breaks in DNA of E.coli K12 Cells
Hernádi, F., Gábor, R., Csongor, J.

The irradiation with a dose of 15 krads significantly changed the sedimentation pattern of DNA. The bacteroid strain has effective repair system, as the cells repaired the breaks in one hour. Certain metabolic changes increased, hydroxiurea decreased the recovery of breaks.

BEVEZETÉS

Az ionizáló sugárzás különféle tipusu károsodásokat hoz létre a sejtek makromelekuláiban. Igy pl. DNS-ben elsősorban egyes és kettős lánctöréseket okoz. Számos szerző vizsgálta a sugárzás által létrehozott törések száma és a sejtek tulélése közötti összefüggést[1-3]. Amig a DNS-ben keletkezett kettős törések általában a sejtek pusztulását okozzák, addig a legtöbb sejtnek megvan az a képessége, hogy az egyes lánctöréseket /szálszakadásokat/ kijavitsa.

A sejtek makromolekuláiban bekövetkező károsodások kijavitását az un. repair rendszerek végzik. Sokféle repair rendszert ismerünk. Legcélszerübb két csoportba osztani őket:

A/ fiziko-kémiai repair, amely a fehérjék, nukleinsavak károsodásának in situ helyreállása[5];

B/ biokémiai repair, amely a károsult makromolekulák, elsősorban a DNS molekulák enzimatikus uton történő helyreállása.

a/ Ide tartozik a fotoreaktiváció, amelyben az un. fotoreaktivációs enzim az ibolyántuli besugárzás hatására keletkezett pirimidin dimereket hasitja szét, ezek között is első helyen a timin dimereket[6].

b/ Az un. "exciziós repair" folyamán a sejt exciziós repair rendszere a kettős spirálu DNS egyik láncában keletkezett károsodott részt kivágja, eltávolitja, és uj, sértetlen nukleotidákkal helyettesiti, miközben a szemben lévő sértetlen DNS láncot használja kódként. Enzimei az un. inciziós, exciziós enzimek, repair polimeráz és DNS ligáz[7].

Az "exciziós repair" rendszert E.coli sejtekben fedezték fel. Rövidesen kiderült, hogy számos más mikroorganizmus is rendelkezik ezzel. Ez a repair rendszer a Micrococcus radioduransban a legaktivabb. Az "exciziós repair" kutatását nagyban elősegitették a genetikai kutatások, amelyekben a repair-ért felelős lokuszokat /géneket/ /uvrA, B, C, D; rec A, B, C; dar 2; exr; res és pol A/, illetve a megfelelő deficiens mutánsokat irtak le. Az egyes gének kontroll funkciójának a kiesése különféle enzimek /enzimatikus lépések/ kiesését jelenti.

Az "exciziós repair" kutatását nem utolsó sorban elősegitette a McGrath és Williams által 1966-ban leirt módszer[8] szélesebb körü alkalmazása, amelynek segitségével neutrális pH mellett a "double-strand" /kettős lánctörések/, alkalikus pH-nál a "single-strand" törések /szálszakadások/ számát, és ez utóbbinak felyreállási folyamatait is lehet vizsgálni.

c/ Végül enzimatikus repair az un. "bypass" helyreállás is, amely homológ DNS molekulák közt lezajló rekombináció utján jön létre[9].

Jelen kisérleteinkben az E.coli K12 /AB 2497/ rec^+ törzs sejtjeinek DNS-ében ionizáló sugárzás adott dózisával létrehozott szálszakadásoknak és helyreállásuknak McGrath és Williams által leirt módszerével történő tanulmányozását tüztük ki célul. A módszer a ^3H-jelzett timint tartalmazó DNS ülepedésének alkalikus sürüségi gradiensben történő mérésén alapszik.

ANYAGOK ÉS MÓDSZEREK

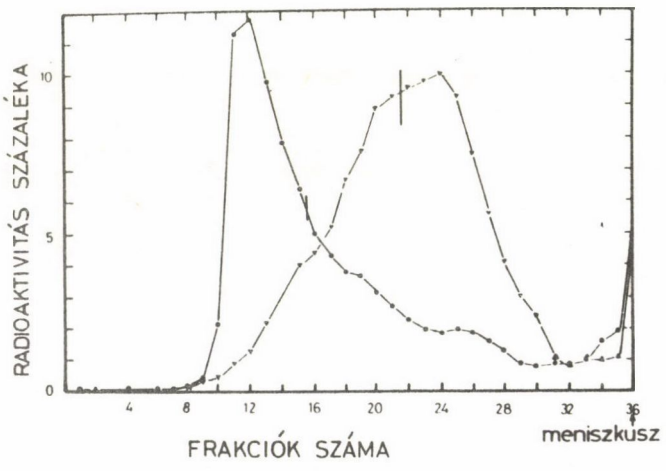
A baktériumokat logaritmikus tenyészfázisban ^3H-timinnel /14,2 µCi/ml tápközeg/ 3-4 óráig jelöltük /kb. $2x10^8$ sejt/ml baktériumszám eléréséig tenyésztettük/. Egyes tenyészetekből 30 perccel a tenyésztés befejezése előtt az igényelt aminosavat /arginin/ megvontuk. Ezután a sejteket szürtük /Sartorius 0,1 µ pórusméret/, mostuk és 2 ml tápközegben reszuszpendáltuk, amely a szükséges kiegészitéseket nem tartalmazta, majd a fent leirt módon, 15 Krad összdózissal besugároztuk. A besugárzás után a minták egyik részét 4 C^o-ra helyeztük, másik részét - a szükséges kiegészitések, illetve hidroxiurea /0,3 M/ hozzáadása után - 37 C^o-on 30-60 percig inkubáltuk. Mind a 37 C^o-on inkubált, mind a 4 C^o-on tartott mintákat szürtük /Sartorius, 0,1 µ pórus-

méret/; 0,05 M hideg trisz-pufferrel /pH=8,1/ mostuk, és 0,5 ml "M9" pufferben reszuszpendáltuk, s a sejtszámot $2x10^8$-ra állitottuk. Ebből a sejtszuszpenzióból 0,3 ml-t vettünk ki protoplaszt előállitása céljából.

A protplaszt előállitását Rupp és Howard-Flanders módszere[10] szerint végeztük. Ezután kb. $2\text{-}5x10^6$ protoplasztot vittünk az előzetesen elkészitett lineáris alkalikus szaharóz gradienset tartalmazó csövekbe /3 ml 5-20% szaharóz, pH=12,0/. A gradienset tartalmazó csöveket MSE Superspeed-50 preparativ ultracentrifugában /E 1054 rotor/ 40 000 fordulat/perc mellett 100 percig centrifugáltuk,majd a gradienseket 36 frakcióra bontottuk. Megfelelő kezelés és szárítás után a frakciókat tartalmazó filtereket 5 ml szcintillációs folyadékba /4 g PPO, 0,1 g POPOP toluollal 1000 ml-re kiegészitve/ helyeztük, s a minták radioaktivitását Packard Tricarb /Model 3375, Packard Instruments/ folyadékszcintillációs spektrométerben mértük.

EREDMÉNYEK

Az 1. ábrán a 15 kraddal történő besugárzásnak az E.coli K12 sejtek DNS-ének ülepedésére kifejtett hatását mutatjuk be. Mint ismeretes, a kapott sugárdózistól függően, a denaturált DNS ülepedési görbéjének lefutása megváltozik. A radioaktivitás nagyobb százalékban jelenik meg a viszonylag kisebb molekulasulyt jelentő, lassabban ülepedő frakcióban, amelyek a besugárzás hatására keletkezett törések folytán jönnek létre.



1. ábra

15 krad besugárzás hatása ^{3}H-timinnel jelzett DNS ülepedésére E.coli K12 törzsben

●——●: besugározatlan
▽——▽: besugározott, ezt követően nem inkubált sejtek.

A görbéket metsző függőleges vonalak ezen és a következő ábrákon az S 1/2 értékeket jelölik

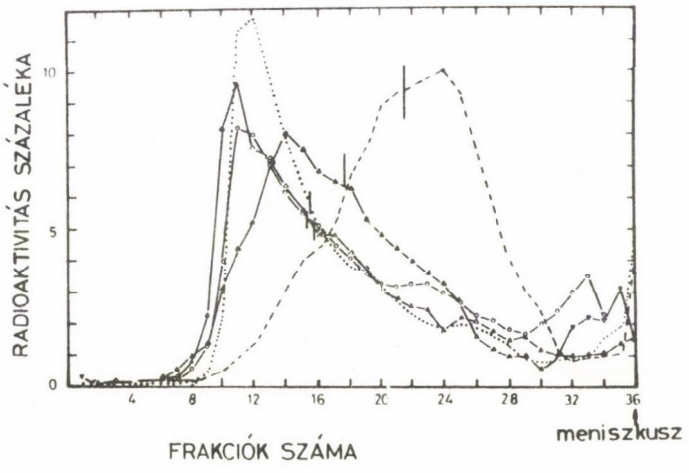
Számértékileg a görbék jellemzésére a Veatch és Okada[11] által használt S 1/2 értéket alkalmaztuk. Az S 1/2 érték a gradiens meniszkuszától visszafelé számitott frakciószámban kifejezett távolságot jelenti, amely alatt a DNS tömegének a fele leülepszik.

Látható, hogy a kontroll S 1/2 értéke 15,2, és ez 15 krad hatására 21,3-ra tolódott el.

A 2. ábrából láthatjuk, hogy az alkalmazott E.coli K12 törzsnek - Kapp és Smith[12] adatainak megfelelően - hatásos repair rendszere van. Már besugárzás utáni 30 perces, 37 C°-on történő inkubáció 21,3-ról 17,5-re csökkentette az S 1/2 értéket, mig 45 perces inkubáció 15,5-re, 60 per-

ces inkubáció 15,3-ra, tehát a kontrollértékre.

Ezután azt a kérdést vizsgáltuk, hogy az aminosav tenyésztés közbeni megvonása - amely a tulélési kisérleteinkben fokozta az E.coli K12 sejtek helyreállási folyamatait - hogyan befolyásolja a fenti sejtek DNS-szálszakadásainak repair-jét.



2. ábra

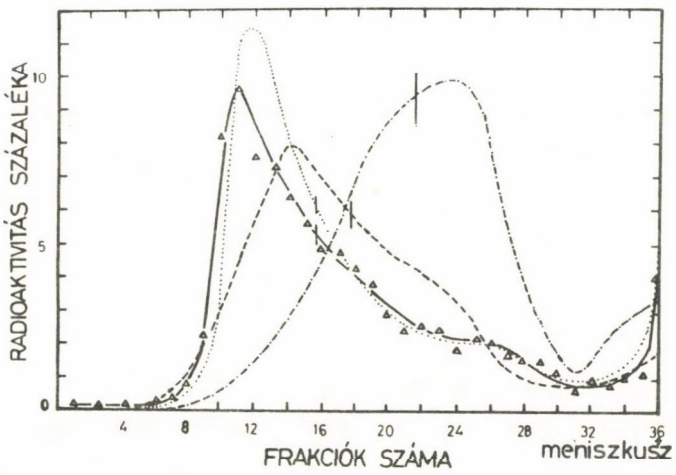
15 krad besugárzás hatására keletkezett DNS szálszakadások helyreállása a besugárzást követő 37 C^{O}-on történő inkubálás alatt, E.coli K12 törzsben

..... : besugárzatlan
------ : besugárzott, ezt követően nem inkubált
▲——▲ : besugárzott, majd 30 percig inkubált
O——O : besugárzott, majd 45 percig inkubált
Δ——Δ : besugárzott, majd 60 percig inkubált sejtek

A 3. ábrán a besugározatlan kontroll, a 15 kraddal besugárzott és besugárzás után nem inkubált, illetve 30 percig 37 C^{O}-on inkubált sejtek DNS ülepedési görbéit láthatjuk. Itt az egyik minta esetén a sejtek tenyészetéből az igényelt aminosavat megvontuk.

A besugárzás után 30 percig inkubált mintánál - mint az előző ábrán is láttuk - 17,5 volt az S 1/2 érték. Ez 15,2 körüli értékre csökkent az igényelt aminosav megvonása esetén.

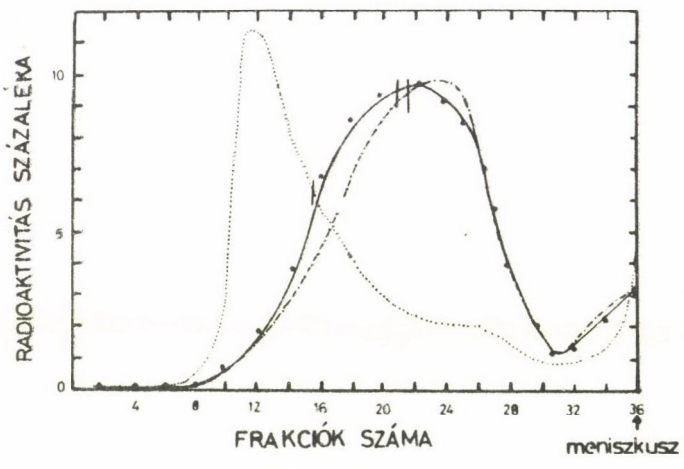
Végül a szálszakadások repair-jének gátolhatóságát elemeztük. O,3 M hidroxiurea - amely ismert DNS-szintézist gátló szer - hatását vizsgáltuk, s megállapitottuk, hogy az a fenti koncentrációban gátló hatást fejt ki a szálszakadások repair-jére.



3. ábra

Az igényelt aminosav megvonásának hatása 15 kraddal történő besugárzás okozta szálszakadások helyreállására /a besugárzást követő 30 perces, 37 C^{O}-on történő inkubálás alatt/, E.coli K12 törzsben

..... : besugározatlan
-.-.-.- : besugárzott, ezt követően nem inkubált
- - - - : besugárzott, majd 30 percig inkubált
Δ——Δ : aminosav-megvonás mellett 30 percig tenyésztett, besugárzott, majd 30 percig inkubált sejtek



4. ábra

Hidroxiurea hatása a 15 kraddal történő besugárzás okozta szálszakadások helyreállására / a besugárzást követő 60 perces, 37 C°-on történő inkubálás alatt/, E.coli K12 törzsben

..... : besugározatlan

-.-.-.- : besugárzott, ezt követően nem inkubált

●——● : besugárzott, majd hidroxiureát tartalmazó tápközegben 60 percig inkubált sejtek

60 percig 37 C°-on történő inkubálás esetén sem volt helyreállás, az S 1/2 érték kb. ugyanaz maradt, mint a besugárzás után egyáltalában nem inkubált sejteknél.

MEGBESZÉLÉS

Kisérleteinkből megállapitható, hogy a 15 rados besugárzás - McGrath és Williams módszerével mérve - jól követhető elváltozásokat okoz a DNS ülepedésében. Ezeket az elváltozásokat a DNS-ben keletkezett szálszakadásoknak tulajdonithatjuk.

A törések kvantitative - helyesebben félkvantitative - követhetők az S 1/2 értékek meghatározásával. Ugyanakkor az is megfigyelhető volt, hogy a szálszakadások jól reparálódnak az alkalmazott rec^+ törzsben a besugárzást követő inkubáció 60 perce alatt.

Ezt a helyreállást fokozni lehetett, ha olyan sejteket alkalmaztunk, amelyekben előzetes tenyésztésük alkalmával az igényelt aminosavat megvontuk. Itt megjegyeznénk, hogy ugyanilyen hatást váltott ki a ciszteinkezelés is[13].

A fenti kezelések ugyanis relativ DNS-töblettel járó kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézist hoznak létre a sejtekben, s ilyen esetén - előbbi kisérleteink szerint - késik a besugárzott sejtek normál DNS-replikációja, s igy lehetővé válik a sejtek repair kapacitásának jobb kihasználása[4].

A repair folyamatot különféle támadáspontu anyagokkal gátolni is lehet. Mi ezek közül egy ismert DNS szintézist gátló anyag, a hidroxiurea hatását mutattuk be.

A szálszakadások helyreállásának elősegitése, illetve gátlása a sejtek túlélésében is jól mérhető különbségeket okoz. Igy pl. a hidroxiureával való gátlás esetén a sejtek túlélési görbéje hasonlóvá válik a rec^- /rec A 56/ törzs túlélési görbéjéhez.

IRODALOM

1. *Dean, C.J., Feldschreiber, D., Lett, J.T.*, Nature 209 /1966/ 49
2. *Corry, P.M., Cole, A.*, Radiat. Res. 36 /1968/ 528
3. *Lohman, P.H.M.*, Mutation Res. 6 /1968/ 449
4. *Hernádi, F.*, Doktori értekezés /1972/ 34. o.
5. *Alexander, P., Lett, J.T., Dean, C,J.*, Progr. Biochem. Pharm. 1 /1965/ 22
6. *Kondo, S., Kato, T.*, Adv. Biol. Med. Phys. Academic Press, New York 12 /1968/
7. *Pettijohn, D., Hanawalt, P.*, J. Mol. Biol. 9 /1964/ 395
8. *McGrath, R., Williams, W.*, Nature 212 /1966/ 534
9. *Hanawalt, P.C.*, Endeavour 113 /1972/ 83
10. *Rupp, W., Howard-Flanders, P.*, J. Mol. Biol. 31 /1968/ 291
11. *Veatch, W., Okada, S.*, Biophys. J. 9 /1969/ 330
12. *Kapp, D.S., Smith, K.C.*, J. Bacteriol. 103 /1970/ 49
13. *Hernádi, F., Nagy, Zs., Kovács, P., Kari, Cs.*, Radiation Protection and Sensitization, Taylor and Francis Ltd. London, /1970/ p. 171.
14. *Hernádi, F., Nagy, Zs., Kari, Cs., Gábor, R.*, Микробиология 3 /1973/ 458

Beérkezett 1973. augusztus 3-án.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/ 584-587

IZOTÓPPAL JELZETT STREPTASE ELŐÁLLÍTÁSA

Sas V.*, Kocsár L.**, Farkas Gy.**, Kutas V.**, Urbánné, Nagy Zs.***
*Tétényi uti Kórház, Budapest
**Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest
***Semmelweis Orvostudományi Egyetem Biológiai Intézete, Budapest

Az egyes szervek összaktivitása, ill. az általuk abszorbeált teljes dózis. A thrombushoz való kötődés autoradiográfiás vizsgálata.

Изготовление Стрептаза, меченного радиоактивным изотопом
Шаш, В., Кочар, Л., Фекете, Дь., Куташ, В., У.Надь Ж.

Суммарная активность и суммарно поглощенные дозы органов. Исследование связывания Стрептаза к тромбу авторадиографическим методом.

Preparation of Isotope Labelled Streptase
Sas,V., Kocsár, L., Fekete, Gy., Kutas, V., Urbánné Nagy Zs.

Total activities and total absorbed doses of organs. Investigation of the bond of Streptase to thrombus by autoradiography.

A Streptase a C csoportba tartozó, β-haemolysist okozó streptococcusok tenyészetének szürlete. Eredményesen alkalmazzák trombo-emboliás megbetegedéseknél. A fibrinolitikus rendszer aktiválásában van fontos szerepe, ugyanis a plazminogén molekulához kötődve katalizálja a plazminogén-plazmin átalakulását. Behatol a thrombusba, és külső és belső lysisét okozza. ^{125}I-dal jelzett Streptase hatásmódját, a szervekbe való bedusulása, eloszlása kinetikáját vizsgáltuk olymódon, hogy intravénás beadás után 10 perccel, 3, 6, 24, 72 és 144 órával végeztünk méréseket. 150-200 g-os patkányokat használtunk. Egy-egy időpontban 3-3 állatot öltünk le, és üreges mérőhellyel ellátott Gamma NP 304-es scaleren mértük a vér, tüdő, máj, vese, bél, gonádok, izom, agy, femur, lép aktivitását.

Meghatároztuk a Streptase biológiai féléletidejét. Kiszámitottuk a fontosabb szervek által abszorbeált sugárdózist, amit radban adtunk meg.

Számitásainkat az alábbi feltételek mellett végeztük:

1. az egyes szervek felhalmozódási aránya embernél ugyanaz, mint kísérleti állatban;

2. 70 kg-os normál ember adatait véve alapul az egyes szervekbe való bedusulást homogénnek tételeztük fel /uniform distribution/;

3. az egyes szerveket a dozimetriában szokásos ellipszoidokkal közelítettük meg;

4. az elnyelt dózist a szervben lévő izotópaktivitásból és a szerven átáramló vérmennyiségből számoltuk;

5. dózisszámitási eredményeinket 144 óráig a kapott halmozódási görbék alapján, ettől kezdve pedig az utolsó mérési adat és a fizikai bomlási idő figyelembevételével számoltuk ki.

EREDMÉNYEK

A pajzsmirigyet nem blokkoltuk Lugollal, ezért ezen szerv adatai csak kritikával értékelhetők.

A Streptaset legjobban a vese és máj dusitja. Érdekes, hogy a gyomor és bél kezdeti, kb. 12 órás maximum után rohamosan elveszti a felvett Strepaset. Különösen érdekes a vérclearence rapid lefolyása.

Az egyes szerveket érő sugárterhelés adatait a táblázatok mutatják.

1. táblázat

A szervek összaktivitása a beadott aktivitás %-ában

Szerv \ Idő, h	10'	3	6	24	74	144
Máj	55,7 ± 1,1	14,1 ± 1,5	11,6 ± 0,82	6,1 ± 1,6	2,2 ± 0,5	1,3 ± 0,4
Tüdő	1,6 ± 0,56	0,82 ± 0,17	0,84 ± 0,21	0,12 ± 0,05	0,02 ± 0,01	0,01 ± 0,005
Lép	2,8 ± 0,84	0,59 ± 0,17	0,5 ± 0,18	0,25 ± 0,07	0,12 ± 0,03	0,1 ± 0,04
Gyomor	1,4 ± 0,2	15,2 ± 4,8	19,3 ± 3,6	0,7 ± 0,35	0,16 ± 0,1	0,03 ± 0,03
Vese	20,5 ± 3,9	8,6 ± 1,8	8,4 ± 0,6	6,2 ± 0,5	2,7 ± 0,35	1,6 ± 0,4
Pajzsmirigy	0,25 ± 0,06	2,9 ± 0,9	13,4 ± 0,9	6,9 ± 3	7,4 ± 2,5	2,9 ± 0,6
Gonádok	0,5 ± 0,2	0,66 ± 0,27	0,9 ± 0,2	0,12 ± 0,08	0,04 ± 0,02	0,01 ± 0,005
Vér	21,7 ± 7	8,2 ± 0,7	9,5 ± 2,2	0,7 ± 0,26	0,02 ± 0,01	∅

2. táblázat

Szerv	A szerv által abszorbeált összdózis
Vese	202 ± 27 mrad
Gyomor	39 ± 6,8 mrad
Máj	43 ± 3,4 mrad
Gonádok	212 ± 34 mrad

E szerint 100 µCi ^{125}I Streptase esetében a pajzsmirigy kapja a legnagyobb sugárterhelést, melynek értéke 2,9 rad /144 órás/, illetve 18,5 rad /totális/. A vese terhelése 0,26, illetőleg 1,56 rad.

Dozimetriai vizsgálataink még nincsenek lezárva, igy eredményeink sem tekinthetők véglegesnek. A ^{125}I-Streptase még nem rutin radiofarmakon, ezért dozimetriai vizsgálatainkkal csupán adatokat akartunk szolgáltatni esetleges humán alkalmazás esetén a sugárterhelési viszonyok megismeréséhez.

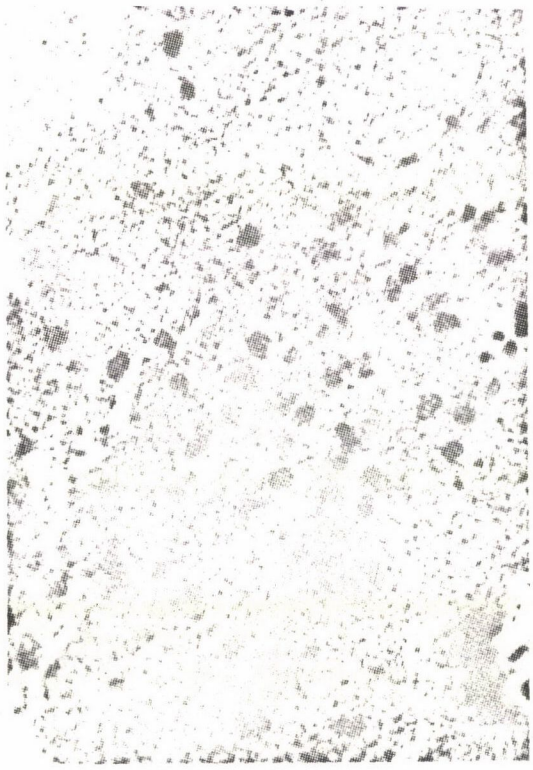
Autoradiográfiás módszerrel vizsgáltuk a Streptasénak a thrombushoz való kötődését, annak erősségét és intenzitását.

In vitro különböző koru /24-48-72-96 órás/ standard emberi véralvadékokat, valamint mütéti és szekciós uton kapott thrombusokat növekvő koncentrációju, ^{131}I-dal jelzett Streptakinase oldatban 3, 6, 12, 24 órai időtartamra inkubáltunk. A lysis mértékét a felüluszó folyadék és az üledék - a nem oldódott alvadék, illetve thrombusmaradványok - izotópaktivitásának összehasonlitásával vizsgáltuk. A vizsgálat során azt találtuk, hogy a felüluszó izotópaktivitása növekedett, az üledék aktivitása pedig csökkent, a Streptase-koncentráció és az inkubációs idő növekedésével arányosan. Ez az eredmény azt bizonyitja, hogy mind a teljes emberi véralvadékok, mind pedig a mütéti uton kapott thrombusok oldódásának mértéke a Streptase-koncentráció és az inkubációs idő függvénye.

Autoradiográfiás vizsgálat céljára humán thrombusokat ^{125}I-dal jelzett Streptaséval, 3 órán át, 37°C-on inkubáltunk. Alapos mosással távolitottuk el a thrombushoz nem kötődött izotópot, majd, a szövettanban szokásos beágyazással, fénymikroszkópos metszeteket készitettünk a thrombusokból. A metszeteket deparafinálás után stripping Kodak AR-10-es filmmel fedtük le. Az expoziciós idő 1-3 hét volt.

A Streptase behatolt a thrombus közepébe, gyakorlatilag átjárta /1. és 2. ábra/.





1. ábra 2. ábra

Humán thrombus-metszet autoradiográfiás képe

Beérkezett 1973. junius 19-én

H I R E K

IZOTÓPOK A TUDOMÁNYBAN

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség Élettudományok Osztályának dozimetriai csoportja ^{252}Ci-forrásokat kölcsönöz a tagállamok egyetemeinek. A források mérete: 33 vagy 18 mm hossz, 1 mm átmérő, és 1,9, illetve 1,01 µg átlagos kaliforniumtartalom.
Kerntechnik, augusztus

NUKLEÁRIS MÜSZEREK

A Technika augusztusi száma kétoldalas, általános tájékoztatást is adó cikkben ismerteti a Gamma Müvek orvosi nukleáris méréstechnikai gyártmányait.

IZOTÓPOK AZ IPARBAN

A Közmü- és Mélyépitő Vállalat salgótarjáni épitésvezetősége a városi vizvezetékhálózat épitése során izotópos vizsgálattal ellenőrizteti a hegesztési varratok minőségét.
Nógrád, augusztus 25.

IZOTÓPOK A MEZŐGAZDASÁGBAN

Tamássy István akadémikus vezetésével ujabb kisérletek kezdődnek, amelyek során a neutron- és gamma-besugárzás mellett kémiai anyagokat is alkalmaznak a növénynemesitésben. E módszerekkel a nemesitéshez eddigi szükséges 12-15 év kétharmadára, egyes esetekben felére csökkenthető.
Esti Hirlap, augusztus 28; Daily News, augusztus 30.

NUKLEÁRIS ENERGETIKA

A TASSZs jelentése szerint 1973 junius 16-án üzembe helyezték a világ első gyorsszaporitó atomerőmüvét. 350 MW teljesitményéből 150 MW-ot villamos energia termelésére, 200 MW-ot pedig a szomszédos Kaszpi-tenger vizének sótlanitására használnak. Ivóviztermelő kapacitása 120 000 t/nap.
Kerntechnik, augusztus

NEMZETKÖZI EGYÜTTMÜKÖDÉS

Szeptember 18 és 25 között került sor az osztrák fővárosban a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 17. közgyülésére.
Magyar Nemzet, szeptember 18; Magyar Hirlap, szeptember 20

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

309024

HU ISSN 0004-721

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 11. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 11. SZÁM

BUDAPEST 1973. NOVEMBER

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős szerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség címe: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114, Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk írói:

R. Merkle
ICI-Faserwerke, Östringen, Német Szövetségi Köztársaság

Hernádi Ferenc, az orvostudományok doktora, Kovács Péter
Debreceni Orvostudományi Egyetem, Gyógyszertani Intézete
4012 Debrecen

Schiller Róbert, a kémiai tudományok kandidátusa
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete 1525 Budapest 114, Pf. 49

Elekes István; Csányi Endre, az orvostudományok kandidátusa,
Gyógyszerkutató Intézet, 1045 Budapest, Szabadságharcosok utja 47/49

Pál Imre,
MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest, Pf.77

Karika Zsigmond, Tarján György, Füzy Márton
Országos Onkológiai Intézet, 1525 Budapest, Pf.25

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-9005

1973. 11. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

Radiometrikus mérési módszerek alkalmazása a müszálgyártásnál..... 593
Merkle, R.

Применение радиометрических методов в производстве синтетических волокон

The Use of Radiometric Methods in the Production of Synthetic Fibres

A cisztein sejtanyagcserére kifejtett hatásainak szerepe a sugárrezisztencia fokozódásában..... 603
II. A hemo-limfopoetikus rendszerre kifejtett hatás
Hernádi F., Kovács P.

Влияние цистеина на обмен веществ клеток и роль этого влияния в повышении радиационной стойкости
II. Влияния на гемолимфопоэтическую систему

Elektronok mozgása szénhidrogénekben..... 611
Schiller R.

Движение электронов в углеводородах

Movement of Electrons in Hydrocarbons

Farmakokinetikai vizsgálatok elsősorban ^{14}C-nel jelzett vegyületekkel.. 617
Elekes I., Csányi E.

Фармакокинетические исследования соединениями, меченными прежде всего изотопом ^{14}C

Pharmakokinetic Investigations with ^{14}C-Labelled Preparates

Tumorszcintigráfiás vizsgálatok ^{169}Yb-citráttal 626
Pál I., Karika Zs., Tarján Gy., Füzy M.

Сцинтиграфия опухолей с помощью цитрата ^{169}Yb

Tumor Scintigraphic Investigations with ^{169}Yb Citrate

HIREK 629

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/593-602

RADIOMETRIKUS MÉRÉSI MÓDSZEREK ALKALMAZÁSA A MŰSZÁLGYÁRTÁSNÁL*

R. Merkle
ICI-Faserwerke, Östringen, Német Szövetségi Köztársaság

Szint- és sűrűségmérés tartályokban. Habzásdetektálás. Fonalfinomság meghatározása. Elektrosztatikus töltés mérése. Tűzjelzés.

Применение радиометрических методов в производстве синтетических волокон
Меркле, Р.

Измерение уровней и плоскости в баках. Обнаружение выступления вспенивания. Определение тонкости волокон. Измерение электростатического заряжения. Обнаружение пожара.

The Use of Radiometric Methods in the Production of Synthetic Fibres
Merkle, R.

Level and density gauging in chemical vessels. Detection of foam generation. Determination of count of yarn. Measurement of electrostatic charge. Fire warning.

BEVEZETÉS

E közleményünkben elsősorban olyan izotópos mérési módszerekről kívánunk áttekintést adni, amelyeket müszálgyártásnál ipari szinten alkalmaznak. Az ICI kutató részlegei által végzett nyomjelzéstechnikai munkákat e helyütt nem ismertetjük.

A radiometrikus eljárások müszálgyártás-technológiai bevezetésének teljes áttekintése érdekében, a termékáramlás irányát követve /1. ábra/, példákat mutatunk be a polimerelőállitás, polimerszáritás, közvetlen fonás, textilizálás és raktározás területéről. A lehetőség határain belül kitérünk az izotópos módszerek specifikus előnyeire és az alkalmazás gazdasági vonatkozásaira, a konkurrens, hagyományos mérési módszerekkel való összehasonlitásban.

TARTÁLYOK TÖLTÉSI SZINTJÉNEK ÉS A TÁROLT ANYAG SŰRŰSÉGÉNEK RADIOMETRIKUS ELLENŐRZÉSE

A szintetikus müszáliparban főleg reakcióedények, különösen a nagy hőmérsékleten, nyomás alatt álló tartályok szintjének ellenőrzésére alkalmaznak szintmérőket. A szintellenőrzés mellett - a mérőberendezéstől függően - sürü-

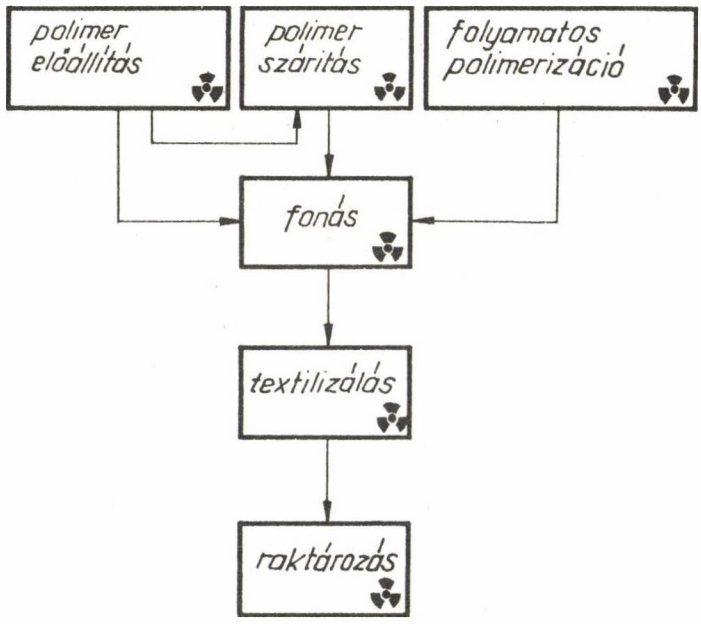
*A Radiometrikus mérési módszerek alkalmazási lehetőségei a textiliparban c. kollokviumon /1972. nov.16. Düsseldorf/ elhangzott előadás.

ség(pl. reaktorban) valamint a granulátumok töltési tömörsége is mérhető.

Izotópos szint- és sürüségmérési módszerek alkalmazásánál két előny emelendő ki[1]:

a/ a töltési szintmagasság és az anyagsürüség folyamatosan ellenőrizhető, vékony és vastag falu tartályokban, kis és nagy hőmérsékleten egyaránt, függetlenül attól, hogy a tartályban folyékony, por alaku vagy granulátum, toxikus, kérget képző vagy habzó anyagot dolgoznak fel, vagy tárolnak;

b/ a tartály átalakitása általában szükségtelen. A hagyományos szintmérőknél az uszó, a vezetőképességi vagy a kapacitiv szonda, az átlátszó ablakok és U-cső elhelyezése a normális munkamenetet zavarja, s az ellenőrzendő anyag agresszivitása, nagy nyomás vagy nagy hőmérséklet miatt sok javitást igényel. Mindez izotópos müszernél elmarad.



1. ábra

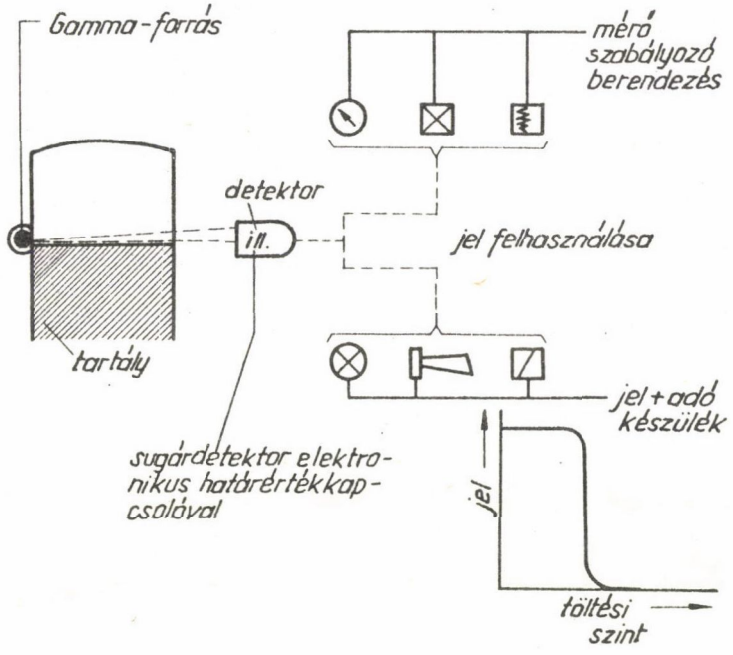
Izotópos mérési müszerek alkalmazási területei

A vegyipar és szintetikus műszálipar ilyen berendezések iránti igénye jelentős. A radioaktiv szintmérők és sürüségmérők alkalmazása , az ellenőrzendő objektum jelentős értéke és az elérhető megtakaritás miatt, különösen rentábilis. Az ICI Petrochemicals Division Radioisotope Services éppen ezért hoz kereskedelmi forgalomba, GammaTrol védjeggyel, ilyen mérőberendezéseket.

Sugárforrásként rendszerint γ-sugárzó radioaktiv izotópokat alkalmaznak /^{60}Co - ^{137}Cs/, a mérési feladattól függően 0,1 - 2 mCi, illetve 0,5 - 18 mCi aktivitással.

A szükséges γ-sugárforrások és detektorok elrendezése, valamint száma a mérési feladattól, a kivánt mérési pontosságtól és a tartálygeometria által adott szerelési lehetőségektől függ[2-4].

A mérés abszorpciós vagy reflexiós módszerrel történhet. A sugárforrás és a detektor legegyszerübb elhelyezési módját szintjelzésnél a 2. ábra szemlélteti.



2. ábra

Az izotópos szintmérés és a jel kiértékelési lehetőségeinek vázlata

POLIKONDENZÁCIÓS FOLYAMATOK ELLENŐRZÉSE IZOTÓPOS MŰSZEREKKEL

Tereftálsav és etilénglikol alapu poliészterpolimerek autoklávban történő előállitásánál, a glikol gáztalanitása során, az autokláv tartalmának tulzott habzása következhet be, amely nyersanyagveszteséget okoz.

A radioaktiv "habzásdetektorok" lehetővé teszik a hab keletkezési idejének megállapitását. A tartályt felülről lefelé ferdén ^{60}Co γ-sugarainak teszszük ki. A fellépő habzás abszorbeálja a sugárforrásból kilépő γ-sugarak egy részét, s a detektor csökkent impulzusszámot jelez. Ily módon megállapitható a polikondenzációs folyamat során a habképződés kezdete s ennek más adatokkal együtt történő értékelése.

A folyamat ügyes módositása révén a habzás messzemenően csökkent. A kitermelés növekedése, valamint a fenntartási költségeknek a "tiszta" üzemmenet jóvoltából adódó csökkenése jelentős megtakaritást tesz lehetővé.

IZOTÓPOS SZINTJELZŐ ALKALMAZÁSA POLIMEREK SZÁRITÁSÁNÁL

Poliészterszálak képzése előtt a polimer granulátumot száritóban 0,05 sulyszázaléknál kisebb nedvességtartalomig kell száritani; ellenkező esetben ugyanis, hidrolizis következtében, depolimerizáció következik be.

A szintszabályozás lehetővé teszi, hogy a poliészter granulátum mindig ugyanannyi ideig tartózkodjék a száritóban, s ezáltal egyenletesen száradjon.

Szintérzékelésre a hagyományos müködési elvü szinthatárkapcsolók alkalmatlannak bizonyultak. Ezeket ugyanis müvelettechnikai okokból a levegőterelő lemezek magasságában kellett beépiteni, ami az áramlási viszonyokat kedvezőtlenül befolyásolta. Gammarelé beépitésével ez a probléma megoldódott. A müködési séma elvben megfelel a 2. ábrán bemutatott szintjelző elrendezésnek.

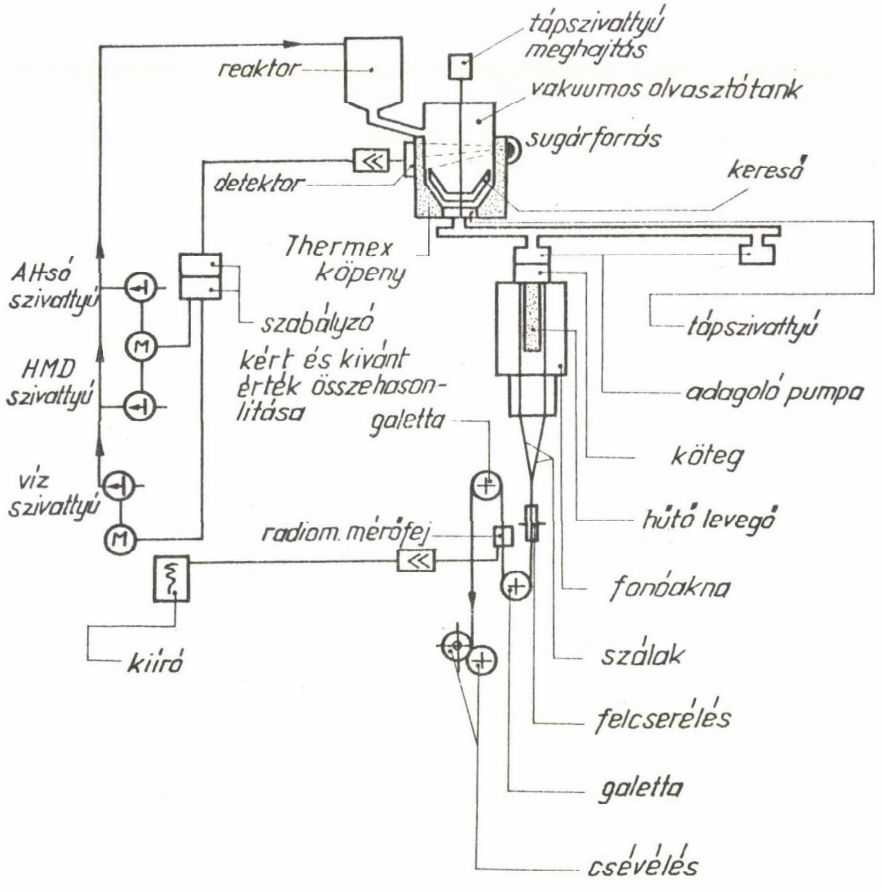
Sugárforrásként 0,5 mCi aktivitásu ^{137}Cs, detektorként pedig GM számlálócső alkalmazható olyan elrendezésben, amelynél a dózisintenzitás egyetlen hozzáférhető ponton sem éri el a 0,75 mr/h értéket. Jelen esetben a radiometrikus módszert méréstechnikai okokból kellett előnyben részesiteni, jóllehet bevezetése kb. 1300 márkával drágább a kapacitiv módszer alkalmazásánál.

FOLYAMATOS POLIMERIZÁCIÓ RADIOMETRIKUS SZABÁLYOZÁSA KÖZVETLEN FONÁSNÁL

Egyenletes szálminőség /pl. szineződés, szilárdság, nyulás/ elérése érdekében a közvetlen fonási elven müködő fonógép olvasztótankjában a szintet állandó értéken kell tartani. A szintet egyrészt a reaktorból bevezetett polimer mennyisége, másrészt a fonási arány szabja meg. Ha a fonásban nem lépnének fel szünetek, akkor elegendő lenne a két mennyiség egyeztetése. A gyakorlatban azonban számolni kell fonási szünetekkel /pl. köteg- vagy szivattyucserénél/, amelyek a fonási arányt befolyásolják. Ezért a reaktorból bevezetett polimer mennyiségét, amely a folyamattól függően néhány kg/óra értéktől

1000 kg/óráig terjedhet, radiometrikus szintmérővel a tényleges fonási arányhoz kell igazitani.

A sugárvédelmi előirásoknak megfelelő védelemmel ellátott sugárforrás /dózisintenzitás kisebb, mint 0,75 mrem/óra bármely elérhető helyen/ a Thermex mandzsettát "sugározza át", valamint az olvasztótankot és tartalmát. Az olvasztótank teltségétől függő mértékben gyengült sugárzást a hütött detektor észleli. Megfelelő elektronikus jelfeldolgozás után az ellenőrző egység eldönti, vajon az olvasztótégely tényleges tartalma megegyezik-e a kivánt tartalommal. Jelentős különbség esetén a reaktor tápszivattyuját a szintnek megfelelően lassabban vagy gyorsabban lehet üzemeltetni, s ezáltal a reaktorból szállitott polimer mennyisége, a specifikációban megjelölt határokon belül, a fonási arányhoz igazodik /3. ábra/.



3. ábra

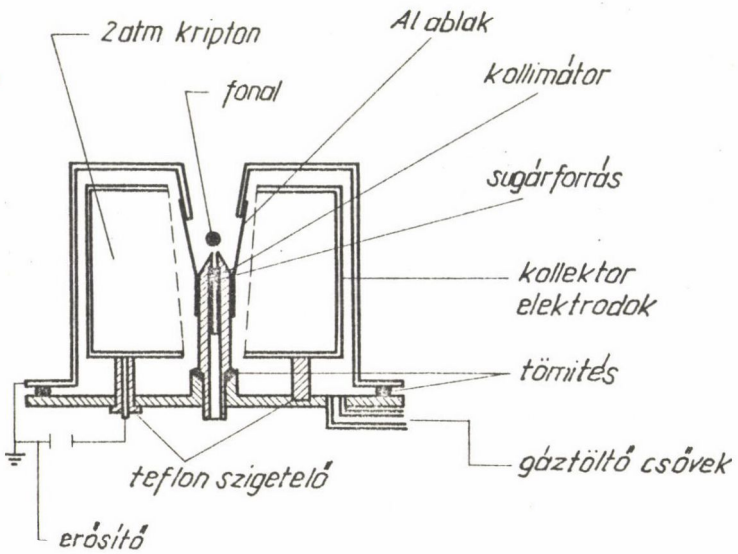
Folyamatos polimerizáció radiometrikus szabályozása közvetlen fonásnál és fonalfinomság meghatározása fonógépeken

Folyamatos szabályozás esetében a tul magas vagy tul alacsony szint az ezekhez tartozó detektorjel segitségével korrigálható, s igy a fonógépek károsodása csökkenthető, valamint a ki nem elégitő fonalminőség jelentős mértékben javitható. Amennyiben pl. a hibás tápszivattyu nem szállit elegendő polimert a reaktorból, s ezáltal jelentős szintcsökkenés lép fel, ugy megfelelő detektorjel hatására tartalékszivattyu állitható üzembe. Tul magas szint esetén, az előbbiekkel szemben, a szivattyuk leállnak. A szokásos szintmérők részben azért bizonyultak alkalmatlannak, mert járulékos tartályátvezetéseket igényelnek, részben pedig, mert nem adnak folytonos jelet.

A FONALFINOMSÁG FOLYAMATOS MEGHATÁROZÁSA FONÓGÉPEKEN

A polimerszálak egyenletességének /hosszegységre eső tömegének / folyamatos ellenőrzése azért fontos, mert nagyobb egyenletlenségek a textilfelület makroszkópikus szerkezeti különbségéhez és csikossághoz vezethetnek.

A hibák gyakran csak a végtermékben válnak felismerhetővé, ezért a reklamációk jelentősek lehetnek. A jelenleg legelterjedtebb módszer, amely vágásból és mérésből áll /gravimetrikus eljárás/ sok időt és bért igényel. Éppen emiatt évek óta folytatnak kisérleteket a fonalfinomság folyamatos /on-line/ meghatározására alkalmas eljárás kidolgozására, amellyel a fonalminőség közvetlenül, a mindenkori fonóhelyen határozható meg. Kedvezőnek mutatkozik erre a célra a 4.ábrán bemutatott elrendezés.



4. ábra

Mérőfej fonalfinomság fonógépen történő meghatározására

A kapacitiv módszer /Uster EDC/ és a pneumatikus eljárás /General Electric Qualigraph, Qualigard, Textrol/ mellett, amelyet kereskedelmi forgalomban kinálnak eladásra, az Atomic Energy of Canada Ltd., Commercial Products és a kanadai Gelanese Corporation /Ottawa/ speciális radiometrikus eljárást fejlesztett ki a szintétikus müszálipar részére.

A Berry[5] és Tolmie[5] által szálak, sörték és kábelek fonalfinomságának folyamatos mérésére előállitott mérőberendezés kis energiáju γ-sugárzás visszaszórása alapján müködik. A sugárforrást a sugárzás energiája és a kollimálás tekintetében ugy alakitják ki, hogy eltérő szálkeresztmetszet, különféle polimerek /két komponensü szálak/ és egyenlőtlen nedvességtartalom csak elhanyagolhatóan csekély effektust okozzanak.

Hasonló okokból a szintetikus müszál pigmentjéből származó röntgenfluoreszcencia-sugárzás igen kis mértékü. Az a tény, hogy a radiometrikus módszer ennyire érzéketlen a zavaró tényezőkkel szemben - amint azt más szerzők is megállapitják - , ugyanolyan nagy korrelációs koefficienshez /r=0,96, r=0,98/ vezet, mint a gravimetriás módszer[6,7].

A sugárnyalábot Ms kollimátor határolja, s a nyaláb egy 2 atm nyomásu kriptonnal töltött ionizációs kamra központi tengelyére irányul. A kollimátor fölé jutó szál által visszavert γ-fotonok vékony /100 mg/cm^2/ aluminium ablakon át jutnak az ionizációs kamrába. 1 s-os időállandó esetén a 1000-4000 dtex fonalfinomság-tartományban ± 1% relativ hiba adódott. A sugárforrás megfelelő módositásával más tartományokban is végezhetők mérések.

A mérőberendezés, a tranzisztorizált erősitő és a mérőfej kis méretének következtében, fonóhelyről fonóhelyre vihető, s az extruziós folyamat akadályozása nélkül müködésbe hozható. A fonalfinomság radiometrikus meghatározásának bevezetésével készülékenként és évenként csupán bérköltségben 15 000 dollár takaritható meg.

A fonalfinomság vágás és mérés utján történő meghatározásának idő- és bérigényes volta miatt meghatározott folyamatoknál folyamatosan müködő mérőfejeket /pl. Uster EDC, 1450 DM;Qualigard, 1320 DM, radiometrikus mérőfej 800 DM/ célszerü beépiteni, s a különféle fonóhelyekre vonatkozó mindenkori szálfinomságot központilag regisztrálni és kiértékelni.

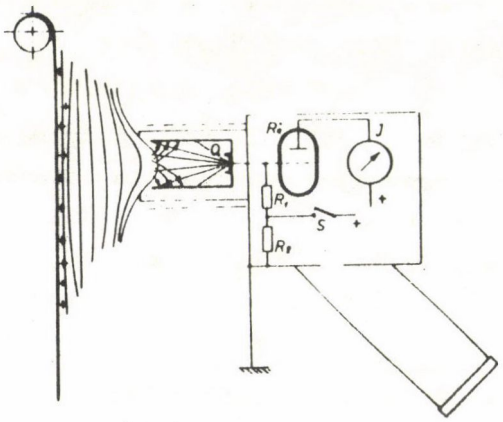
FONALFELVETÉSNÉL FELLÉPŐ ELEKTROSZTATIKUS JELENSÉGEK ELLENŐRZÉSE STATOMETERREL

Textilizálásnál a nem nyujtott szintetikus szálakat nyujtás, ezt követő gombolyitás, darabolás vagy felvetés utján a mindenkori feldolgozásra legalkalmasabb formára hozzák. A textilizálás területén a zárt sugárforrás alkalmazására példaként a fonalfelvetést emlitjük meg.

Felvetésnél a kupos csévékből lánchengereket állitanak elő. A jelentős feldolgozási sebesség /500 m/min vagy több/ miatt a fonalnak a szálvezetőn bekövetkező surlódása elektrosztatikus feltöltődést hoz létre, ami termelési zavarokhoz vezethet, ha nem akadályozzák meg aviválással, ionizátorral vagy egyidejü olajozással.

A H 1407 tipusu Statometer/sztatikus töltésmérő készülék, gyártó cég: Herfurt, Hamburg/ segitségével az elektrosztatikus feltöltődés által létrejött feszültségek előjelhüen mérhetők. A müszerrel néhány volttól 100 kV-ig határozhatók meg sztatikus feszültségek[8].

Az 5. ábra a Statometer elvi felépitését mutatja be. Müködését ennek alapján ismertetjük.



5. ábra

Elektrosztatikus feltöltődés radioaktiv forrással történő kimutatásának elvi vázlata

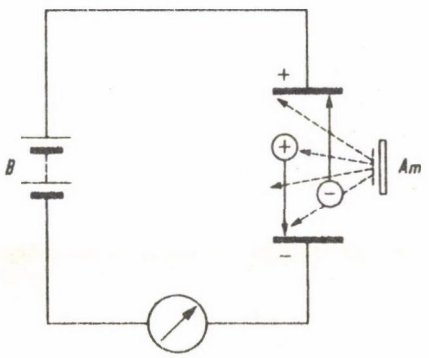
Egy ionizációs kamrában elhelyezett, 50 nCi aktivitásu Ra-226 sugárforrás állandó dózisintenzitása konstans ionáramot hoz létre. A mérendő sztatikus feszültség elektromos tere áthatol at elölről nyitott ionizációs kamrán, és gyorsitja az ionokat. Az ezáltal fellépő, a térerővel arányos kamraáramot elektométercsöves erősitő erősiti, s a V/cm-re hitelesitett I mérőmüszer mutatja. Annak érdekében, hogy ±60 V/cm-nél nagyobb térerő is mérhető legyen, iriszblendét épitettek be, amely mögött közelitőleg gömbszimmetriáju tér alakul ki. Az iriszblende átmérőjétől függően az átmérő harmadik hatványával forditva arányosan gyengül a mérendő elektrosztatikus térerő, s ily módon, a legkisebb blendenyilásnál, 15 000 V/cm-ig terjedő térerő is mérhetővé válik. A mérőberendezés hordozható, és igy állvánnyal vagy anélkül igen előnyösen alkalmazható különféle termelőhelyeken, amelyeknél/például különféle aviváláseloszlás vagy gépelrendezések miatt/ feltöltődési jelenségek lépnek fel. A Statometer kielégiti a sugárvédelmi előirásokat. A készülék 800 DM-be kerül, a termelés ellenőrzésére kielégitő érzékenységgel rendelkezik, egyuttal jelentősen olcsóbb az olyan nem radiometrikus mérőberendezéseknél, mint pl. a Schwenkhagen /kb. 4000 DM/ vagy a Statometer-hez hasonlóan szintén pisztoly alakra kiképzett "Kleinwachter" elektromos térerőmérő /1700 DM/.

A Herfurt cégen kivül a düsseldorfi 3M Company 200 mCi triciumforrással azonos elven müködő "3M Stati Meter" elnevezésü müszerét kinálja eladásra, amelynek ára a Statométerének kétszerese.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

IONIZÁCIÓS TŰZJELZÉS RAKTÁRBAN

Ionizációs tüzjelzésnél a keletkező tüzfészek már legkorábbi stádiumában érzékelhető. A tüzkár tökéletlen égéssel kezdődik. Égési gázok keletkeznek, amelyeket az ionizációs tüzjelző jelez. Ily módon az ionizációs tüzjelzés a leghatásosabb és leggyorsabb berendezés, amely tüzvédelemre alkalmazható.



6. ábra

Gázmolekulák ionizációs tüzjelző készülékben bekövetkező ionizációjának vázlata
B - telep; Am-^{241}Am sugárforrás

Az ionizációs tüzjelzés elvét a 6. ábra szemlélteti. A ^{241}Am sugárforrás α-sugarai állandóan ionizálják a levegőmolekulákat. Az ionizációs kamrában kb. 10^{-9} A erősségü áram folyik. Ha az égési gázok jóval nagyobb tömegü molekulái bejutnak az ionizációs kamrába, akkor az ott jelenlevő ionok és elektronok elektródok felé irányuló mozgást akadályozzák. Az α-sugarak az égési gázok molekuláit is ionizálják, nagyobb tömegük miatt azonban az égési gázok ionjainak mozgékonysága kisebb, mint a levegőből keletkező ionoké. Igy előbbiek lassabban vándorolnak a katód felé, ugyanakkor a rekombináció valószinüsége is nagyobb. Ezen fizikai hatások következtében az ionizációs kamra áram - feszültség görbéje módosul /7. ábra/.

Az I-vel jelölt áram - feszültség görbe az ionizációs kamra viselkedését irja le levegő jelenlétében, mig az alacsonyabban fekvő I'-vel jelölt a nehezebb égési gázok jelenlétében adódik /a 7. ábra diagramjának görbe jobboldali része/.

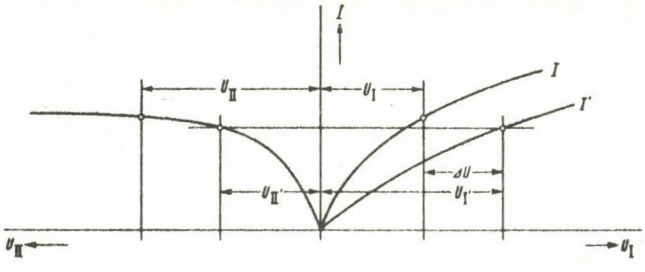
Az ionizációs kamra elektromos szempontból ugy viselkedik, mint egy nagy értékü ellenállás, amely az ionizált levegő tisztaságától függően változtatja ellenállását.

Ionizációs kamrának tüzjelzőként történő alkalmazásánál döntő jelentőségü az, hogy a legnagyobb ellenállásváltozást az égési gázok okozzák, s ne a jelenlevő por vagy köd.

Az ionizációs tüzjelző két ionizációs kamrából áll: az I vizsgáló kamrából és a II referenciakamrából, valamint a glimmreléből /8. ábra/.

Az I vizsgáló kamrát huzalrács védi a durvább porszemecskék behatolásától, a rács egyidejüleg a negativ elektród szerepét is betölti. Az Am I americium-

preparátum gyürü alaku. A II referencia kamrát az I vizsgáló kamrával elektromosan sorba kapcsolják. A II kamra falára /amely egyuttal ezen kamra elektródja is/, két americiumpreparátumot helyeznek el. Ezek a külső levegőtől kielégitően el vannak zárva. A nedvesség, nyomás és hőmérséklet gyakorlatban előforduló, s az időjárás okozta ingadozásai lassan mennek végbe, s igy mindkét kamrát azonos módon befolyásolják.



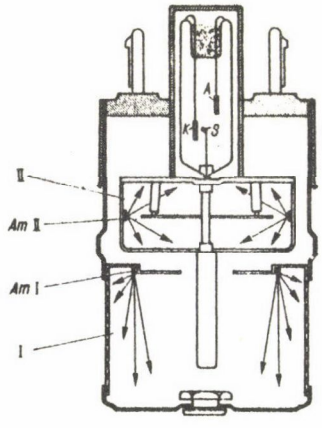
7. ábra

Az ionizációs tüzjelző munkadiagramja

Jobboldalt: I - ionizációs kamra; Baloldalt: II - ionizációs kamra; U - feszültségek. A vesszővel jelölt mennyiségek /I'/ az égési gázok hatására beálló viszonyokat szemléltetik; I - áram

Az ionizációs tüzjelző munkadiagramjában a két kamra részfeszültségét U_I és U_{II} jelekkel jelöltük. A vesszővel jelölt mennyiségek az égési gázok hatására beálló viszonyokat jelölik. A referenciakamra munkapontja a telitési áram tartományában van, ily módon a kamrák feszültségeloszlásának változásakor mindkét kamrán átfolyó áram erőssége közelitőleg változatlan marad. Az égési gázok által okozott ellenállásváltozás igy lényegében az U_I részfeszültség megnövekedését okozza.

Mihelyt U_I értéke eléri az S-K glimmrelé gyujtófeszültségét, a cső begyullad, és az A anódhoz folyó áram riadóztatja a központot /7. ábra/.



8. ábra

Az ionizációs tüzjelző szerkezeti felépitése

I - ionizációs kamra; II - referencia kamra; A - anód; S-K-a glimmrelé gyujtóköze; AmI-^{241}Am sugárforrás; AmII-^{241}Am sugárforrás

Az ionizációs tüzjelző megszólalási érzékenysége nagy, már átlagosan 27 mg/m^3 szilárd anyag vagy 40 mg/m^3 nylon elégése esetén müködésbe lép. Egy tüzjelző kb. 50-70 m^2 ellenőrzéséhez elegendő. Egy tüzjelzőkészülék, amely 1000 m^2-t ellenőriz, s 20 jelzőállomásból áll, a központtal és kábelekkel együtt kb. 10 000 márkába kerül. A fentebb leirt ionizációs tüzjelzőt a Siemens cég /NSzK/ és a Cerberus cég /Svájc/ állitja elő és árusitja.

Sugárvédelmi szempontból érdemes megjegyezni, hogy az AmO_2 vegyületben levő americium sugárforrást fémrétegek közé sajtolják be, a sugárforráshoz magához a tüzjelző szétszerelése nélkül nem lehet hozzáférni, a tüzjelzőből nem lépnek ki α-sugarak. A teljes aktivitás 75 μCi Am-241. A készülék felszerelését az illetékes hatóságok engedélyezik.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/603-610

A CISZTEIN SEJTANYAGCSERÉRE KIFEJTETT HATÁSAINAK SZEREPE A SUGÁRREZISZTENCIA FOKOZÓDÁSÁBAN

II. A HEMOLIMFO-POETIKUS RENDSZERRE KIFEJTETT HATÁS

Hernádi F., Kovács P.
Debreceni Orvostudományi Egyetem Gyógyszertani Intézete, Debrecen

Egereknek adott 1000 mg/kg L-ciszteín-HCl megnövelte a lép kolóniaképző egységeinek sugártürését. A beadást követő 10 nap alatt egyéb változások is felléptek a hemo-limfopoetikus rendszer működésében. Mivel az állatok sugárrezisztenciája csak a ciszteín adása után 30 perccel volt fokozott, az ezután megfigyelhető vérképzőszervi változások nem magyarázhatják a ciszteín sugárvédő hatását; a csontvelőben folyó DNS-szintézis ugyanakkor megfigyelhető csökkenése azonban már szerepet játszhat ebben.

Влияние цистеина на обмен веществ клеток и роль этого влияния в повышении радиационной стойкости

II.Влияние на гемолимфопоэтическую систему
Хернади, Ф., Ковач, П.

Дача 1000 мг/кг L-цистеина-HCl повысила радиационную стойкость колониотворных единиц селезенки. Через 10 дней после дачи выступали и другие изменения в действии гемолимфопоэтической системы. Имея в виду, что радиостойкость опытных животных повысилась лишь в 30-ом минуте после облучения, защищающий эффект цистеина не объясняется упомянутыми изменениями, однако снижение синтеза ДНК вероятно играет роль в этом.

The Role of the Metabolic Effects of Cysteine on the Enhancement of Cellular Radioresistance
II. Effects on the Haemo-Limphopoietic System
Hernádi, F., Kovács, P.

A single i.p. dose of 1000 mg/kg L-cysteine-HCl increased the radiation resistance of endogenous spleen colony forming units in mice. In addition other alterations in the haemo-limphopoietic system were observed during the 10 days following administration. As the radiation resistance of the whole animals was not elevated during this time but 30 minutes after cysteine injection, changes are not likely to be correlated to the radioprotective effects of cysteine on the whole animal. The inhibition of bone marrow DNA synthesis, however, observed 30 minutes after administration, may play a role in radioprotection.

Az előző közleményünkben* ismertetett - Escherichia coli /E.Coli/ sejteken végzett - kisérletekben rámutattunk a ciszteín azon anyagcserehatásaira, amelyeknek következtében a ciszteinnel kezelt E.coli sejtek sugárrezisztenciája fokozódott. Kisérleteink további részének kiindulását az a feltételezés képezte, hogy a ciszteín nemcsak a baktérium sejtpopulációk sugárrezisztenciáját képes növelni az anyagcsere megváltoztatása révén, hanem olyan sejtpopulációkét is, amelyeknek a károsodása az emlős szervezet ionizáló sugárzás letalis dózisai utáni elpusztulásáért közvetlenül felelős lehet.

Az ionizáló sugárzás LD_1 és LD_{99} közé eső dózisai után az emlősök sugárhalálát elsősorban a hemopoetikus őssejtek pusztulása okozza. Ezért a ciszteinnek is a fenti sejtpopulacióra kifejtett hatását vizsgáltuk.

A kémiai sugárvédők - elméletileg - kétféle módon befolyásolhatják kedvező irányban az ionizáló sugárzás által kárositott őssejt-populációt:

---

*Izotóptechnika 16/1973/ 336

egyrészt védhetik az ionizáló sugárzás károsító hatásától, másrészt elősegithetik a károsodott populáció helyreállását.

A fentiek figyelembevételével a következő feladatokat tüztük ki célul:

1. megállapitani, hogy ciszteinkezelés miként befolyásolja a hemopoetikus őssejtek sugárérzékenységét: radioprotektiv hatást fejt ki, vagy a besugárzást tulélő őssejtekből kiinduló repopulációt befolyásolja.

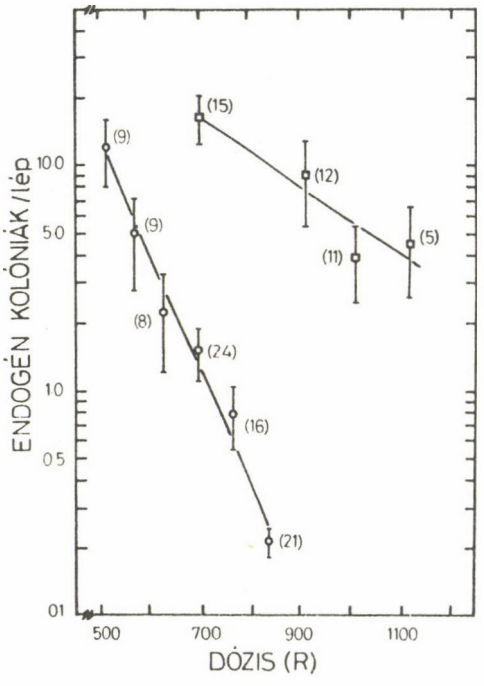
2. Eldönteni, hogy a cisztein mikroorganizmusokon kiváltott legfontosabb anyagcserehatásai érvényesülnek-e a hemopoetikus őssejteken, és ezek kapcsolatba hozhatók-e a fenti sejtpopuláció, illetve az emlős szervezet cisztein által okozott sugárrezisztensebb állapotával.

3. Kisérletesen megvizsgálni, hogy ezek az anyagcserehatások az őssejtfunkcióval rendelkező kolóniaképző egységeken /CFU-okon/ kivül kiterjednek-e a vörösvérsejtté, illetve humorális és celluláris immunokompetens sejtté differenciálódó sejtekre is.

A kisérletek egy részét 10-14 hetes CBA/BALB/c F_1 hibrid him egereken, a zömét 10-16 hetes BALB/c him és nőstény egereken végeztük. Az állatok ad libitum kaptak préselt takarmányt és vizet.

ad 1./ Kisérleteink első részében a ciszteinnek az endogén lépkolóniaképző egységekre /amelyek valószinüleg az őssejtekkel azonosak/ kifejtett protektiv hatását elemeztük.

Az 1. ábrán a besugárzás után 10 nappal észlelt endogén lépkolóniák számát logaritmikus léptékben, a leadott sugárdózis függvényében ábrázoltuk.



1. ábra

Endogén lépkolónia-képző egységek /CFU-ok/ ionizáló sugárzás utáni tulélése BALB/c egerekben

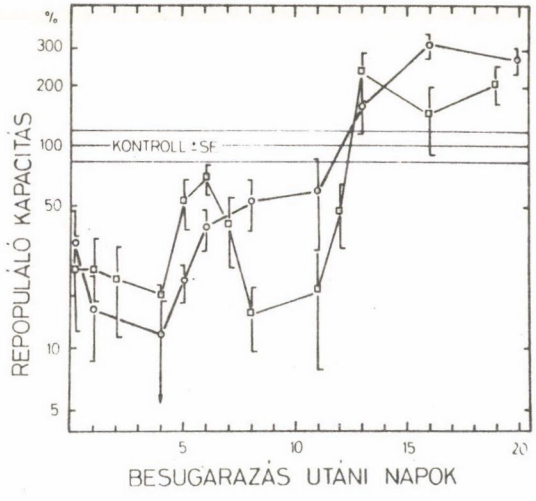
O: kontroll

□: ciszteinnel védett

A függőleges vonalak - a jelen és a következő ábrákban egyaránt - a standard hibát jelentik, mig a zárójelben megadott számok az egyes röntgendózisoknál értékelt lépek számát

A kezeletlen állatokban az endogén CUF-ok D_o értéke 85,6 R. Minthogy minden megvizsgált röntgendózisnál a CFU-ok száma a ciszteinnel kezelt állatokban nagyobb, mint a kezeletlenekben, biztos, hogy a cisztein védi az endogén CFU-okat osztódóképességük sugárhatására bekövetkező elvesztésétől. Nehezebb meghatározni, hogy ez a védelem milyen mértékü. A CFU-ok D_o értéke a ciszteinnel védett állatokban 288 R volt, tehát a CFU-ok sugárrezisztenciája 3,4-szeresére emelkedett. Irodalomban található más módszerrel számitva a ciszteindózis redukáló faktorát /DRF/, az csak 2,1, illetve 1,6 volt, 1 vagy 10 kolóniát véve alapul.

A kétféle módszerrel számitott DRF nagysága közötti különbség oka a "metszési érték" ciszteinkezelés hatására létrejött csökkenése. A "metszési érték" csökkenése a telepképző egységek számának a cisztein hatására a besugarazatlan állatokban is létrejövő megkisebbedésére utal.



2. ábra

A femorális csontvelő repopuláló kapacitásának röntgenbesugárzás utáni restituciója, a lépkolónia-képző egységek számának változása alapján

O: 150 R besugárzás

□: cisztеinelőkezelés + 150 R besugárzás

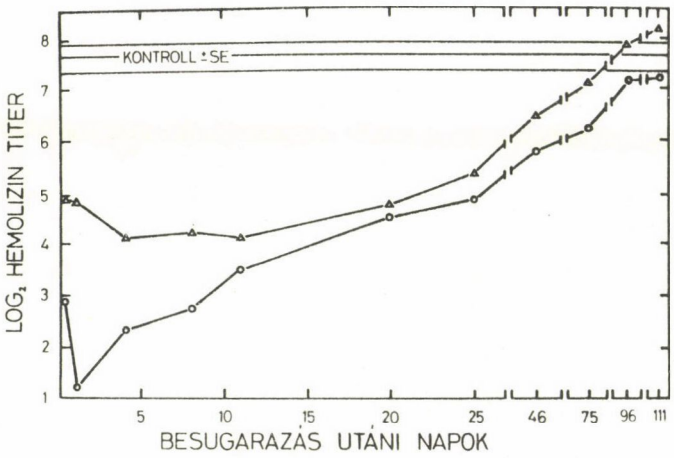
Az egyes röntgendózisoknál az értékelt recipiens egerek /lépek/ száma 8-19 volt

A 2. ábra a femorális csontvelő repopuláló kapacitásának 150 R egésztest-besugárzás utáni restitucióját mutatja, lépkolónia-képző egységek számának változása alapján. A restitució mind a ciszteinnel védett, mind a nem védett állatokban a 4. napon kezdődött; üteme is azonos volt a két csoportban. Ezen adatok szerint a cisztein-előkezelés nem csökkentette az őssejt-populáció restitucijának megindulásához szükséges időt, és nem is gyorsitotta a repopulációt, azonban az őssejt-populáció sugárkárosodástól való védelme több őssejt tulélését eredményezte, és ezért a repopuláció magasabb szintről indult el a ciszteinnel védett állatokban, mint a nem védettekben.

Hasonló eredményeket kaptunk akkor is, amikor a femorális csontvelő repopuláló kapacitását ^{59}Fe-nek a recipiens egerek perifériás eritrocitáiba való beépülése alapján mértük.

Azon elképzelés alapján, hogy az egerekben az antitesttermelő sejtek prekurzorai is a hemopoetikus /antigénre nem reagáló/ őssejtekből származnak,

megvizsgáltuk a cisztein hatását a heterohemolizin-termelő képesség röntgenbesugárzás utáni restitucijára is.



3. ábra

A hemolizintermelő képesség röntgenbesugárzás utáni változása

O: 400 R besugárzás

Δ: ciszteinelőkezelés + 400 R besugárzás

A humorális antitestképzés 400 R utáni sugárkárosodásból való restitucijója a fentiekhez hasonló képet mutatott. A besugárzás után 1 órával immunizált egerek hat nappal később mért hemozilintitere erősen lecsökkent. Ez az érték besugárzás után egy nappal immunizált egereknél érte el a mélypontját, majd fokozatos emelkedés után a 100. nap körül már megközelitette, de nem érte el a kontrollértéket.

A ciszteinnel kezelt egerek hemolizintermelő képessége a besugárzás hatására kisebb mértékben csökkent, mint a ciszteinnel nem védett állatoknál, s ezért a repopuláció magasabb szintről indult el. Igy a restitució a 100. napra már teljes volt. A hemolizintermelő sejtpopuláció védelmén kivül természetesen a közvetlenül hemopoetikus őssejtekből származó prekurzorsejtek, illetve az un. antigén reaktiv sejtpopuláció védelme is fontos szerepet játszhat.

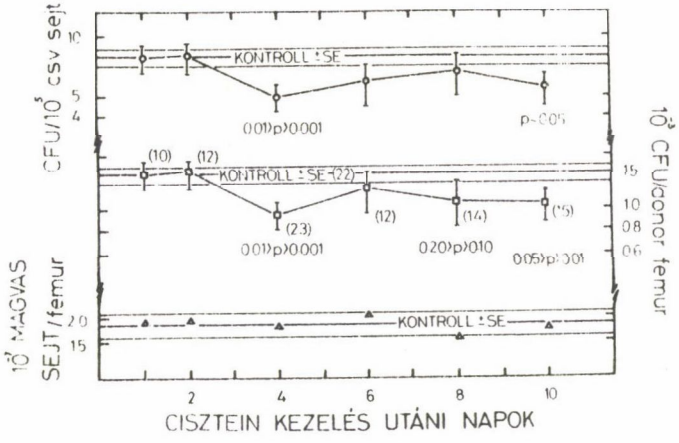
Nem tudunk teljes magyarázatot adni a ciszteinnel kezelt állatokban a femorális csontvelő repopuláló kapacitásában bekövetkező másodlagos csökkenésre. Ez ismételten arra mutat, hogy a cisztein - a CFU-ok sugárrezisztenciájának növelése mellett - a hemopoetikus szövetek funkciójában változást idéz elő.

ad 2./ Ezért a továbbiakban indokoltnak látszott megvizsgálni azt, hogy miként befolyásolja a cisztein önmaga a hemolimfo-poetikus rendszer müködését, és hogy ezen hatások összefüggésbe hozhatók-e az emlős szervezet egésze sugárrezisztenciájának cisztein hatására bekövetkező növelésével.

Ezen kisérletek első részében a ciszteinnek a femorális csontvelő magvas sejtjei számára, illetve repopuláló kapacitására kifejtett hatását vizsgáltuk.

Megállapitottuk, hogy az egy femurban talált magvas csontvelősejtek szá-

ma a megfigyelési idő alatt lényegesen nem változott a kontrollhoz képest, a 1000 mg/kg dózisu, i.p. adott ciszteinkezelés után /4. ábra, alsó rész/.



4. ábra

Cisztein hatása az egér csontvelőre

Alsó görbe /Δ/: az egy femurra eső magvas csontvelősejtek változása;

Középső görbe/□/:egy femurban található CFU-ok változása;

Felső görbe /O/:10^5 magvas csontvelősejtre eső CFU-ok változása

A p értéket a Stundent-módszerrel számitottuk ki

Az egy donor femur csontvelejében talált kolóniaképző egységek száma 1506 ± 133 volt /illetve 7,99 ± 0,68/10^5 magvas csontvelősejt/ a kezeletlen állatokban. A CFU-szám a fenti értéket mutatta a cisztein adása utáni első 2 napon. A 4. naptól kezdve kisebb értékeket kaptunk, azonban e csökkenés csak a 4. és 10. napokon volt statisztikailag szignifikáns mértékü /4. ábra, középső rész/.

Hasonló eredményeket kaptunk, ha az exogén kolóniák számát a recipiens állatba fecskendezett magvas csontvelősejtek számára vonatkoztattuk. Az igy kapott görbén /4. ábra, felső rész/ a ciszteinkezelés utáni 10. napon kapott érték a statisztikai szignifikancia határán van /$p < 0,05$/.

Ugyanakkor nemcsak a csontvelőben, hanem a lépben található CFU-ok számában is változás volt tapasztalható a fenti időperiódus alatt. Ez a változás a ciszteinkezelést követő csökkenésből, majd növekedésből, tulkompenzációból, s az eredeti értékre való visszatérésből állt.

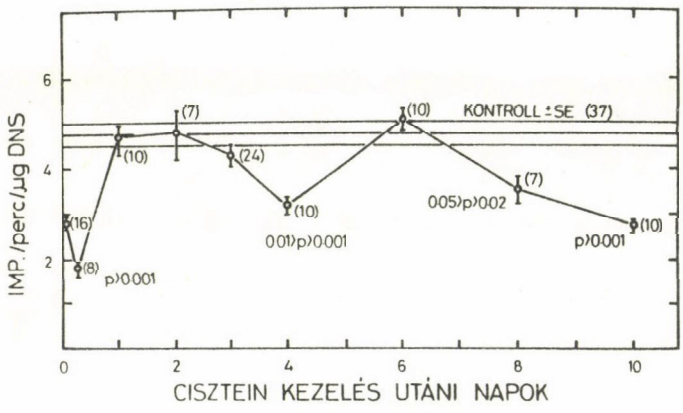
A CFU-ok számában észlelt eltéréseket az őssejtpopuláció nagysága változása jelének tekinthetjük.

Ezt követően a ciszteinnek a ^{14}C-jelzett timidin egér csontvelő és lép DNS-be való in vivo beépülésére kifejtett hatását vizsgáltuk.

Az 5. ábra a csontvelő DNS-be való beépülésére kifejtett hatását mutatja. Hasonló görbét kaptunk a lép DNS-be való beépülése vizsgálatakor is, csak a görbe az utolsó napokon nem mutatott csökkenő tendenciát. Megállapitható, hogy a cisztein reverzibilis gátló hatást fejt ki a csontvelőben és lépben folyó sejtproliferációra.

Annak eldöntésére, hogy a hemolimfo-poetikus szövetekben a cisztein ha-

tására létrejövő változásokat kiséri-e az egész állat sugárrezisztenciájának változása, meghatároztuk a ^{60}Co-sugárzás $LD_{50/30}$ értékeit a besugárzás előtt különböző időpontokban kezelt - s ennek megfelelően a hemolimfo-poietikus rendszerükben a fenti változásokat mutató - egereken.



5. ábra

Ciszteinkezelés hatása a ^{14}C-jelzett timidin egércsontvelő DNS-ébe való beépülésére.

A ciszteinkezelés után különböző időpontokban 1 µCi/20 g testsuly ^{14}C-2-timidint adtunk, majd 60 perc mulva mértük a csontvelő-DNS fajlagos radioaktivitását. A zárójelben lévő számok a kisérletekben értékelt femurok számát jelentik

Eredményeink szerint a cisztein adása után 30 perccel észlelt növekedést kivéve - amely az irodalomból jól ismert - az $LD_{50/30}$ értékek nem változtak a megfigyelési periódus végéig.

A ciszteinadás után 30 perccel észlelt sugárrezisztencia-fokozódás, és azok az adataink, hogy a jelzett timidin csontvelő- és lépsejtek DNS-ébe való beépülése gátolható - ha a ciszteint 30 perccel a jelzett prekurzor befecskendezése előtt adtuk - kapcsolatba hozhatók. A cisztein valószinüleg azért növeli az állatok besugárzás utáni $LD_{50/30}$ értékeit, mert késést vált ki a vizsgált sejtpopuláció sejtjeinek DNS-szintézisében, s igy növeli repair rendszereik hatékonyságát.

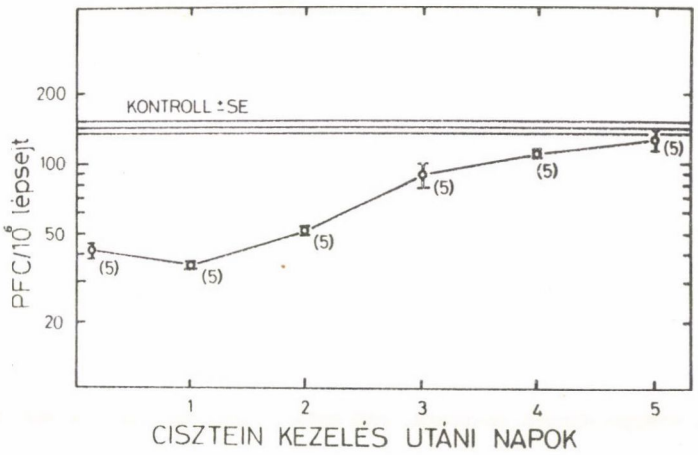
ad 3./ Miután a fenti eredmények egyértelmüen azt mutatták, hogy a cisztein mind a csontvelőben, mind a lépben, befolyásolja a hemopoietikus őssejtpopuláció nagyságát, illetve a sejtosztódást, azt vizsgáltuk meg, hogy a ciszteinhatás kiterjed-e a vörösvérsejtté, illetve humorális és celluláris immunokompetens sejtté differenciálódó egyedekre is.

A vörösvérsejtté történő differenciálódást ^{59}Fe /$^{59}FeCl_3$/-nek az egerek perifériás eritrocitáiba való beépülése alapján, a humorális immunitást egyrészt a szérum hemolizin titer, másrészt plaque-képző egységek meghatározásával mértük. A celluláris immunitást pedig a CBA és BALB/c egerek F_1 hibridjében lezajló graft versus host reakció segitségével határoztuk meg.

Megállapitottuk, hogy a kolóniaképző egységek számában bekövetkező változásokon kivül a cisztein befolyásolta a vörösvérsejtté való differenciálódást, a graft versus host reakciót, illetve a heterohemolizinek termelődését is. A ciszteinhatás mind a merkaptoetanol-szenzitiv 19S, mind a rezisztens

7S hemolizinekre kiterjedt, s a plaque-képző sejtek számában beálló változásokkal is követhető volt.

A 6. ábrán a ciszteinnek ez utóbbi, a plaque-képző sejtek számára kifejtett - Jerne-módszerrel mért - változását mutatjuk be.



6. ábra

Cisztein hatása az egerek lépében lévő plaque-képző egységek /PFC/ számára

A PFC számot 10^6 magvas lépsejtre vonatkoztattuk

A 6. ábrán látható, hogy az 1 millió élő magvas lépsejtre jutó plaque-képző sejtek száma ciszteinkezelés után 1 órával a kontroll 145-ös értékéről 40-re esett. Az első nap után már növekedés volt, s az 5. napi értékek csaknem elérték a kontroll állatokét.

Lényegében a 6. ábrán bemutatott kép jellemezte minden esetben a cisztеinkezelést. A változás a ciszteinkezelést követő csökkenésből, majd növekedésből, tulkompenzációból, s az eredeti értékre való visszatérésből állt.

Befejezésül megállapithatjuk, hogy a cisztein - anyagcserehatásai révén - a hemopoetikus őssejtpopulációt is befolyásolja, megzavarva annak egyensulyi állapotát. A repopuláló kapacitás reverzibilis csökkenése nemcsak az őssejtek telepképző funkcióját érintette, hanem a ^{59}Fe-nek a perifériás vérbe való beépülését, illetve a humorális és celluláris immunitását is. A fenti jelenségekből, továbbá a ^{14}C-jelzett timidin csontvelő- és lépsejt DNS-be való beépülésének reverzibilis csökkenéséből - számos lehetőséget figyelembe véve - arra következtethetünk, hogy a cisztein az őssejtpopulációban is reverzibilis sejtosztódásgátló hatást fejthet ki.

Ez a gátló hatás valószinüleg a cisztein E.coli sejtekben kifejtett β-merkaptoetilamin /ciszteamin, MEA/-szerü, illetve harmadlagos - aspecifikus - hatásainak felelhet meg. A cisztein másodlagos hatásánál fogva - mint azt az E.coli sejteknél is leirtuk - gátolja a membránhoz kötött, oxidációs folyamatokban résztvevő ferri-enzimek müködését, és ezen keresztül energiahiányt teremt. A másodlagos, MEA-szerü hatás következtében szintén kialakulhat relativ DNS-többlettel járó kiegyensulyozatlan makromolekula-szintézis. Igy elképzelhető, hogy a cisztein hemopoetikus őssejtekben kifejtett sugárvédő hatásában

szintén szerepet játszhat az, hogy a cisztein a besugárzott őssejtekben a DNS-szintézis reverzibilis gátlása folytán lehetővé teszi a sejtek repair-kapacitásának jobb kihasználását.

A cisztein metabolikus hatásai folytán nem változtatta meg az ionizáló sugárzás által károsodott őssejtpopuláció potenciálisan ép őssejtekből kiinduló repopulációjának ütemét. Kísérleteink szerint a ciszteinhatás abban nyilvánul meg, hogy - a fentebb valószinüsitett - sejtszintü repair-kapacitás jobb kihasználása révén a ciszteinnel kezelt állatokban több őssejtből indult ki a repopuláció, és igy hamarabb ért véget. Igy fokozódott a kísérleti állatok százalékos tulélése.

A szerzők az irodalmi adatokat az érdeklődők rendelkezésére bocsátják.

Beérkezett 1973. április 24-én.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/611-616

ELEKTRONOK MOZGÁSA SZÉNHIDROGÉNEKBEN

Schiller R.
MTA Központi Fizikai Kutató Intézete, Budapest

Движение электронов в углеводородов
Шиллер, Р.,

Анализом электрической проводимости и радиационно-химического поведения облученных жидких углеводородов показывается, что электроны локализованы в них неодинаково. Локализация определяется флюктуацией энергии среды, таким образом состояние электронов зависит от энергетических условиях локализации, а также от удельной теплоемкости и сжимаемости раствора.

Movement of Electrons in Hydrocarbons
Schiller, R.
The analysis of the electrical conductivity and radiation chemical behaviour of irradiated liquid hydrocarbons indicates that the electrons in these liquids are localized with different probabilities. The extent of localization is determined by the energy fluctuations of the medium, hence the actual electron states depend both on the energy changes associated with the localization process and on the specific heats and compressibilities of the liquid.

Talán nem a legszükebben vett szakterület elfogultsága gondoltatja velünk, hogy a szolvatált elektronok felfedezése az utóbbi évtized fizikai kémiai kutatásának egyik legérdekesebb eredményévé vált. Az a tény, hogy vizben, alkoholban, ammóniában, aminokban, éterekben, egyszóval a legkülönfélébb poláros anyagokban a molekulákból kiszakitott elektronok olyanforma sajátságokat mutatnak, mint a nehéz, "valódi" ionok, messzemenő hatással volt a kvantumkémiai teóriáktól kezdve a preparativ kémia módszeréig a vegytan egy sor, egymástól távoleső területére. Pedig éppen nem uj az a felismerés, hogy a szabaddá váló elektronok oly nagy mértékben képesek polarizálni a dipólusmolekulákból álló folyadékokat, hogy az általuk létrehozott polarizációs töltések terében ők maguk megkötődnek. Mindenesetre jóval régibb, mint a szolvatált elektronok felfedezése. Az amóniában vagy aminokban oldódó alkáli fémekről régen tudjuk, hogy kationokra és elektronokra disszociálnak. Ez utóbbiak és a permanens dipólusmomentummal rendelkező molekulák pedig oly nagy erővel vonzzák egymást, hogy az elektronok befészkelik magukat a molekulák közé, szolvátburokként hordozzák őket diffuziós mozgásuk orán, s ezért mozgékonyságuk és reakcióik sebessége közel esik a negativ inonokéhoz. Elméletileg tehát előrelátható volt, hogy ha az elektronok nem termikus disszociáció utján jutnak a poláros folyadékba, hanem ionizáló sugárzás szakitja

ki őket a molekulákból, sorsuk akkor is az önmaguk létrehozta potenciálgödörben történő megkötődés lesz; a folyadék néhány molekulányi térfogatelemében lokalizálódnak egy szolvátburok belsejében. Igy aztán, amikor először sikerült sugárkémiai uton létrehozott szolvatált elektronokat közvetlenül megfigyelni, az öröm nagyobb volt a meglepődésnél.

A fent leirt kvalitativ képből is látnivaló, hogy az elektron lokalizálódását előidéző alapvető hatás az elektron és a közeg között fellépő vonzás. Ahogyan ez a vonzó kölcsönhatás anyagról-anyagra gyengül a molekulák dipólusmomentumának, azaz a folyadék dielektromos állandójának csökkenésével, ugy lesz egyre valószinütlenebb az, hogy egy elektron lokalizálódik valamely folyadékban. Ez - hallgatólagosan ugyan - annyit jelent, hogy kis dielektromos állandóju, apoláros folyadékokban az elektronok, akármilyen módon juttattuk is őket a folyadékba, nem fognak lokalizálódni, nem hoznak létre olyan potenciálcsapdát, amely befogná aztán őket.

Ha azonban ez a kijelentés igaz, mit higgyünk azoknak a negativ töltéshordozókról, amelyeket besugárzott szénhidrogénekben figyelhetünk meg? Az utóbbi néhány évben meglehetősen sok információ gyült össze ezeknek a természetéről. Kémiai reakcióikban határozottan redukáló ágensként viselkednek, elemi jódból, még inkább alkil-halogenidekből haloid-ionokat hasitanak le. Mozgékonyságuk jóval nagyobb, hogysem nehéz ionnak tekinthetnénk őket; valóban, ha nehéz ionná, pl. Cl^--dá alakulnak át, mozgékonyságuk nagymértékben csökken. A legmeglepőbb, hogy sajátságaik, mindenekelőtt mozgékonyságuk és sugárkémiai hozamuk, anyagról anyagra változik. Ezt a változást annál nehezebb valamely egyszerü fizikai vagy kémiai sajátsággal kapcsolatba hozni, minthogy a legszembeötlőbb eltérések éppen az izomérek körében lépnek fel. Az elektronok normál-pentánban több mint két nagyságrenddel mozognak lassabban, mint neo-pentánban; a normál-hexánban észlelt hozamuk körülbelül ötöde a neo-hexánban észleltnek, és folytathatnánk a hasonló megfigyelések sorát. Ugy tetszik, hogy amint nő a folyadékmolekulák gömbi szimmetriája, ugy növekszik a negativ töltéshordozó mozgékonysága és hozama is.

A besugárzott rendszerek kemizmusa közismerten igen bonyolult. Egyéb vizsgálati módszerek után kellett nézni, ha tiszta képet akartunk kapni ennek az ionnak a természetéről. Tudjuk, hogy ha valamely fémet megfelelően nagy frekvenciáju fény ér, abból elektronok lépnek ki, amelyeket külső elektromos tér hatására össze lehet gyüjteni. Ezt a fotoeffektust, amelyet általában vákuumban vagy kis nyomásu gáztérben szoktak gyakorlati célokra kiváltani, használták arra, hogy segitségével elektronokat /egészen biztosan elektronokat/ juttassanak folyadékokba. A szénhidrogénbe merülő fotokatódot látható fénysugaraknak tették ki, megmérték az igy létrejövő fotóáramot és a kilépő elektronok mozgékonyságát. Arra a megnyugtató eredményre jutottak, hogy a fotoelektronok sebessége megegyezik a sugárzás létrehozta negativ töltéshor-

dozóéval, ez utóbbi tehát valóban nem más, mint elektron. Ez az észlelet azonban nem magyarázza még meg sem az izomérek eltéréseit, sem azt, hogy ezek az elektronok kémiai reakciósebesség és mozgékonyság dolgában miért emlékeztetnek a szolvatált elektronokra.

A hasonlóság pedig nagyon mélyreható. A sebességi állandók és mozgékonyságok ugyan nagyobbak a szénhidrogénekben, mint például vizben vagy alkoholban, de sokkal kisebbek, semhogy közel-szabad, szolvátburok nélkül mozgó elektronoknak lehetnének tulajdonithatók. A legutóbbi időben sikerült ezeknek az elektronoknak a spektrumát is meghatározni. Ez egyértelmüen lokalizált elektronállapotokra utalt, nemkülönben az a tény is, hogy a töltéshordozók transzport-sajátságait az Arrhenius-egyenlet irja le a hőmérséklet függvényeként.

Hogyan kell tehát a szénhidrogénekbe került elektronok állapotát elképzelnünk? A válaszhoz a folyékony nemesgázok analógiája vezet el. Hasonló jelenségeket lehetett azokon is megfigyelni, mint a szénhidrogéneken. Cseppfolyós héliumban az elektronok majdnem olyan lassan mozognak, mint a nehéz ionok; mozgékonyságuk hőmérsékletfüggése az Arrhenius-törvényt követi. Cseppfolyós argonban az elektronok vagy százezerszer gyorsabban mozognak, mint héliumban; mozgékonyságuk az abszolut hőmérséklet 3/2-ik hatványával forditva arányos. Ezeket a tapasztalatokat azonban megelőzte egy másik észlelet, amely a jelenleg helyesnek gondolt magyarázathoz segitette a kutatókat.

Ha pozitron elektronnal találkozik, ugy mindkét részecske "megsemmisül", vagyis γ-sugárzássá alakul. Előfordul azonban, hogy ez az annihiláció nem rögtön, a két részecske találkozásának pillanatában megy végbe, hanem a pozitron és elektron rövid élettartamu semleges képződménnyé alakul. Ebben a pozitroniumatomnak nevezett komplexumban elektron és pozitron közös sulypontjuk körül kering. A pozitronium élettartamát az szabja meg, hogy a két részecske spinje parallel-e vagy antiparallel. A hosszabb élettartamu változat bomlásának sebességét azonban nagymértékben befolyásolja a környezet elektronsürüsége is. Hiszen minél több elektron veszi körül a pozitroniumatomot, annál valószinübb, hogy a pozitron talál olyan elektront, amelynek spinorientációja kedvező az annihiláció szempontjából. Az elektronsürüség ismeretében meg is lehet jósolni a hosszu élettartamu pozitroniumatomok várható átlagos életidejét. A folyékony héliumon végrehajtott mérések határozottan ellentmondtak az ilyen jóslatoknak. A pozitroniumatomok élettartama jóval nagyobb volt, mint azt a héliumfolyadék sürüsége alapján várni lehetett. Mintha a pozitroniumatomok környezetében lecsökkent volna a hélium sürüsége.

Valóban ez történik. A pozitroniumban megkötött elektron ugyanis taszitó hatást fejt ki a szomszédos héliumatomokra. A hélium elektronhéja lezárt, oda további elektront bejuttatni nincsen mód, ezért az atomban megkötött

és az atomok közé beékelt elektronok között taszitó potenciál alakul ki. Ez a hatás csökkenti le a pozitronium környezetében a hélium sürüségét, és hoz létre üreget a folyadékban. Ellenszegül ennek a taszitásnak az atomok között ható van der Waals-vonzás és az elektron és a közeg közt fellépő polarizáció. A három hatás eredője azonban, hélium esetén, olyan, hogy pozitronium körül kis buborék alakul ki, mintegy 15 Å sugárral. Ennek belsejében gyakorlatilag nem tartózkodik héliumatom. Ez a modell jó magyarázatát adta a pozitron-annihilációval kapcsolatos észleleteknek.

Kézenfekvő volt a feltételezés, hogy a héliumban magányosan bolyongó elektron is ilyen buborékot hoz létre, főként annak a belsejében tartózkodik, a buborék falát alkotó atomokkal együtt mozog. Ki lehetett számitani a buborékok sugarát, az elektromos vezetési jelenségekben mutatkozó tömegét; az ezen az alapon számitott elektronmozgékonyság jól egyezett a tapasztalattal. Hasonló számitásokat és méréseket végeztek cseppfolyós hidrogénre nézve is. A csekély mozgékonyságot itt is jól magyarázta a fenti elképzelés.

Mi különbözteti meg azonban az argont a héliumtól? Az elektronok természetesen itt is eltaszitanák maguk körül az atomokat. Ellenszegül azonban ennek a polarizáció, amely az elektron és az atomok közti vonzásban nyilvánul meg. Ez a hatás hélium és hidrogén esetén elhanyagolható volt, argonban azonban oly nagy, hogy felülmulja a taszitást, igy nem alakul ki a folyékony argonban buborék, amelynek belsejében az elektron helyet foglalhatna. Az elektron ezért közel-szabad állapotában, sikhullámként mozog ebben a folyadékban, és ennek megfelelően nagy mozgékonysággal is rendelkezik.

Figyeljünk fel egy érdekes ellentmondásra! A rendkivül apoláros héliumban is, a rendkivül poláros vizben is jöhetnek létre lokalizált állapotu elektronok. Ezek nem egy tulajdonságukban hasonlitanak is egymásra. Mig azonban a poláros folyadékokban a lokalizáció feltétele az volt, hogy elektron és közeg között elég nagy *vonzó* potenciál lépjen fel, addig apoláros folyadékokban a feltétel az erős *taszitó* potenciál fellépte.

Kézenfekvőnek tetszik a gondolat, hogy a nemesgázfolyadékok körében kialakitott modellt alkalmazzuk a folyékony szénhidrogének esetére is. Ennek a jogosságát ugy tudjuk ellenőrizni, hogy meghatározzuk az elektronok és a szénhidrogén-molekulák között fellépő potenciál nagyságát és előjelét. Határozott taszitó potenciálnak lokalizálódás, tehát kis elektronmozgékonyság, határozott vonzó potenciálnak közel szabad elektronok és igy nagy mozgékonyság felel meg.

A potenciált fotoelektromos uton lehet meghatározni, a kérdéses folyadékkal töltött fotocella áramának hullámhosszfüggését analizálva. Ilyen méréseket több helyen végeztek /a mi laboratóriumunkban is/, és arra az eredményre jutottak, hogy alig egy-két szénhidrogénben lép fel valami csekély

taszitás elektron és közeg között; az esetek többségében a folyadék vonzza az elektronokat. Ennek azonban, az eredeti buborékelmélet értelmében, közel szabad elektronállapotokra kellene vezetnie, vagyis igen nagy és egymás között körülbelül egyenlő elektronmozgékonyságokat kellene majd minden szénhidrogénben találnunk. A kisérletileg megfigyelt mozgékonyságok azonban jóval kisebbek voltak, és - mint emlitettük - ugyancsak eltérő számértékeket mutattak.

A magyarázat, amelyet e jelenségekre kerestünk, két részből áll. Először is azt vizsgáltuk meg, hogy vajon az elektron és a közeg közötti vonzás eleve kizárja-e a buborék és az ezzel járó lokalizált állapot keletkezését. A buborékkeletkezés elmélete, noha számitásba vette a polarizációs kölcsönhatásokat a közel szabad elektronok esetén, szándékosan elhanyagolta ezeket az erőket a buborékba zárt elektronok leirásánál. Ez a közelités elfogadható az igen kis dielektromos állandóval rendelkező hélium esetében, tarthatatlan azonban a szénhidrogének körében. Kiszámitottuk a polarizáció energiajárulékát, és ennek ismeretében vizsgáltuk meg ujra a buborékkeletkezés energiamérlegét. A polarizációs energiát igen számottevőnek találtuk, ebből pedig az következik, hogy az elektron és közeg közti vonzás esetében is keletkezhet buborék, amelyben az elektron lokalizálódik.

Az egyes szénhidrogének közti eltérések magyarázatára már a folyadékok magatartásának finomabb részleteit is tekintetbe kellett vennünk. Az elektronok rendkivül kis térfogatokba lokalizálódnak. Az ilyen kis térfogatu tartományok energiáját nem lehet egyszerüen a folyadék makroszkóposan meghatározható átlagos energiájával egyenlőnek tekinteni. A kis tartományok energiatartalma átlagérték körül ingadozik; annál kisebb is, nagyobb is lehet. Az ingadozás mértékét, a statisztikus mechanika tanitása szerint, a folyadék fajhője és kompresszibilitása szabja meg.

Elképzelésünk szerint minden szénhidrogénben kialakul a közel-szabad és a lokalizált elektronoknak valamilyen egyensulya. A kisérletileg meghatározható mozgékonyságot a kétféle állapotu elektronok viszonylagos mennyisége szabja meg. Az egyensuly kialakulását pedig az energiaingadozások kormányozzák. Annak ugyanis, hogy egy elektron lokalizálódjék, az a feltétele, hogy lokalizált állapotban az elektron és a folyadék együttes energiája kisebb legyen, mint közel szabad állapotban. A lokalizált elektront magába foglaló kis folyadéktartomány energiáját azonban már az ingadozási jelenségek fogják meghatározni. Egy elektron akkor lokalizálódhatik, ha talál egy megfelelően kis energiáju folyadékcellát; delokalizálódik, ha a cella energiája megnő. Igy a lokalizáció valószinüségét az szabja meg, hogy milyen valószinüséggel lépnek fel a folyadékban meghatározott nagyságu fluktuációk.

Ami viszont a fluktuációk szükséges nagyságát illeti, tehát azt a leg-

kisebb mennyiséget, amellyel a folyadékcella energiasürüségének el kell térnie az átlagértéktől, azt már a közel szabad elektron és a folyadék közti potenciál nagysága és előjele dönti el. Ezt a mennyiséget lehet az előbb említett fotoelektromos uton meghatározni.

Kiszámitottuk az elektronok mozgékonyságát és aktiválási energiáját néhány szénhidrogénre, a fent leirt modell segitségével. Az eredmények meglehetősen jól egyeztek a mérési adatokkal. Ezzel azonban a kérdést még természetesen nem tekinthetjük lezártnak. Nemcsak további szénhidrogénrendszerekre kell kiterjesztenünk az eddigi méréseket és számitásokat, hanem közvetlen bizonyitékokat is kell szereznünk az energiaingadozások feltételezett szerepére nézve. Ez a munka még előttünk áll.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/ 617-625

FARMAKOKINETIKAI VIZSGÁLATOK ELSŐSORBAN ^{14}C-VEL JELZETT VEGYÜLETEKKEL

Elekes I., Csányi E.
Gyógyszerkutató Intézet, Budapest

A felszivódás mérése a vérbeni koncentráció révén. A gyógyszer megoszlása a szérum és a vörösvértestek között. A jelzés helyének kihatása a mérésre. A felszivódás helyének megállapitása, a kiürülés ellenőrzése.

Фармакокинетические исследования соединениями, меченными прежде всего, изотопом ^{14}C
Элекеш, И., Чани, Э.

Измерение резорбции с помощью определения концентрации препарата в крови. Распределение препарата в серуме и в эритроцитах. Значение места метки для измерения. Определение места резорбции. Контроль опорожнения.

Pharmakokinetic Investigations with ^{14}C-Labelled Preparates
Elekes, I., Csányi, E.

Determination of resorption by measuring concentration in blood. Distribution of the preparate in serum and erythrocytes. The effect of location of labelling on measurement. Localization of resorption, control of passage.

Az utolsó két évtizedben az uj gyógyszerek forgalombahozatalát megelőző vizsgálatok mércéje mind magasabbra került, és a vizsgálatok köre kiszélesedett. Mig korábban egy anyag humán kipróbálásához elég volt a jó farmakológiai hatásosság, addig az anyagnak ma számos, elsősorban biológiai jellegü előirásnak is eleget kell tennie. Ezen vizsgálatok összességét preklinikai vizsgálatok névvel foglaljuk össze. Ezekhez jelentős szellemi erőre, hosszu időre, nagy munkaerőkapacitásra és mind több anyagi ráforditásra van szükség.

A krónikus toxicitási, a teratológiai és karcinogenetikai vizsgálatok mellett, /utóbbira azonban csak kivételes indokolt esetekben kerül sor/ a preklinikai vizsgálatok közé tartozik a gyógyszerek farmakokinetikai és metabolikus vizsgálata is. Az előzőek tisztán biztonsági előirások, a farmakokinetikai vizsgálatok pedig a farmakológiai hatástani adatok alátámasztására, magyarázatára és kiegészitésére szolgálnak.

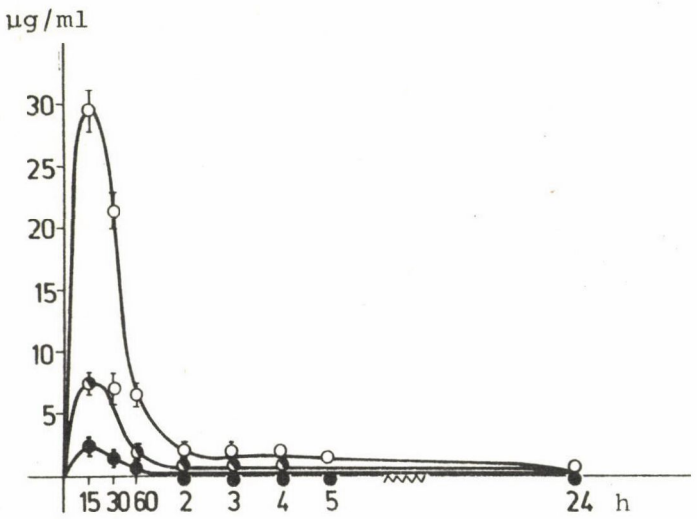
A jelzett vegyületek segitségével olyan kérdésekre kapunk választ, melyek más módszerekkel nem vizsgálhatók, kémiai vagy biológiai kimutatásuk, a kis szervi koncentráció miatt, nem lehetséges.

Egy vegyület gyógyszerré válásának legalapvetőbb követelménye a jó fel-

szivódás, melynek mérésére a vegyület vérbeni koncentrációjának a meghatározása a legegyszerübb és legbiztonságosabb módszer.

A következőkben vérszinttipusokat mutatunk be, orális és parenterális adás után. A vérmintákat orális, szubkután vagy intramuszkuláris kezelés esetén a patkányok farokvénájából, intravénás kezelés esetén a szemüregből veszszük.

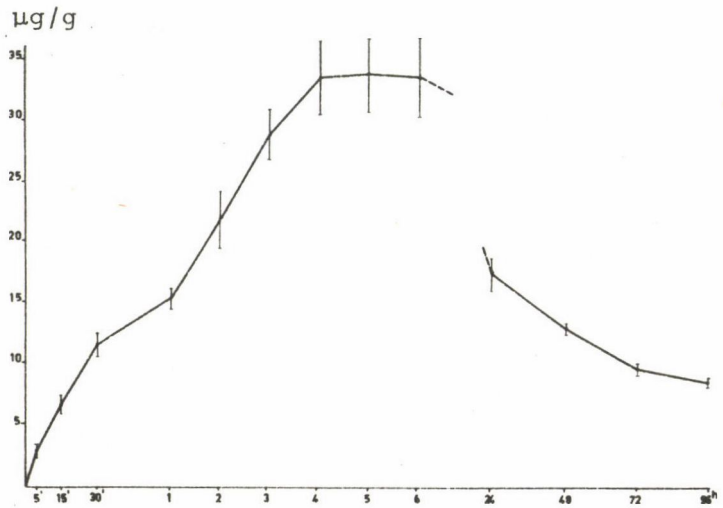
Az 1. ábrán rendkivül gyorsan felszivódó és gyorsan kiürülő karbotoxibenziloxiamin származék vérszintjét mutatjuk be. A vegyület szelektiv hisztidin-dekarboxiláz-gátló hatást mutat.



Orálisan adva rendkivül gyorsan és nagymértékben szivódik fel, de ugyanilyen sebességgel eliminálódik a vérből és az egész szervezetből.

1. ábra

^{14}C-nel jelzett GYKI- 11.121 vérszintje patkányokon, orális adás mellett



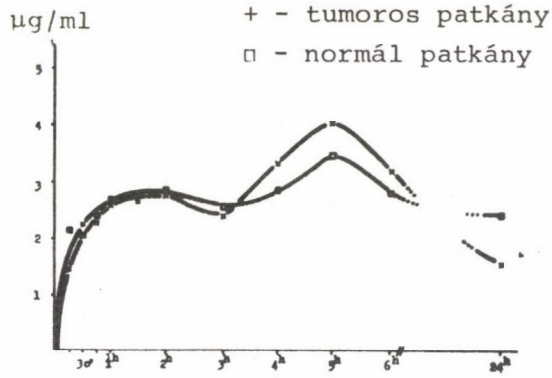
2. ábra

^{14}C-nel jelzett GYKI-43.013 vérszintje p.o. kezelés után

A következő ábra antigasztrin hatásu vegyület vérszintjét mutatja, orális adás után /GYKI - 43023/.

Látható, hogy a felszivódás sokkal lassabban következik be, mint az előző vegyületnél, de a kialakult vérszint abszolut értéke igen jelentős. Ezen tipusnál a vérszint tartama jelentősen megnyult.

A 3. ábrán a Zitostop nevü citosztatikum vérszintjét mutatjuk be. A görbe lassu és és rossz felszivódásra utal.



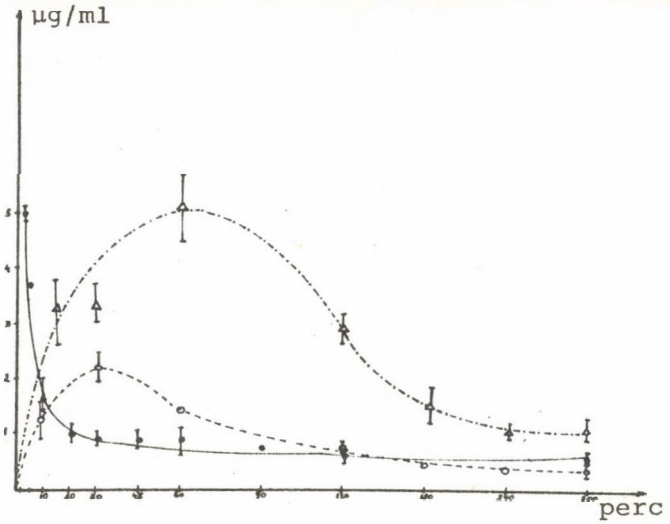
3. ábra

^{14}C-nel jelzett Zytostop vérszintje normál és tumoros patkányokban, orális kezelés után

A továbbiakban béta-adrenerg-gátló vegyület orális és intravénás adás utáni vérszintjét tüntettük fel.

4. ábra

Béta adrenerg gátló vegyület vérszintje i.v. és p.o. kezelés mellett



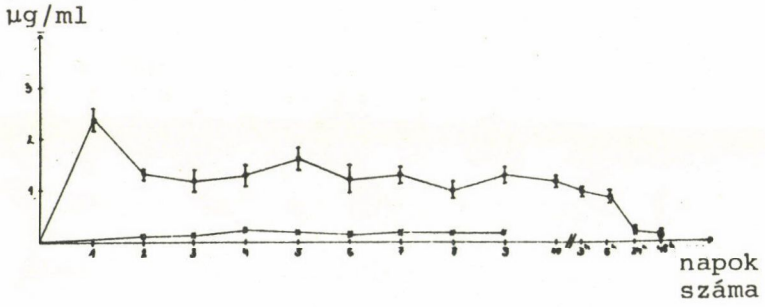
A vegyület orálisan adva is jól felszivódik, és a dózis és a vérszint között szoros összefüggés mutatható ki. I.v. adás után a szokásos gyors eliminációs kép alakul ki.

A tartós kezelés során megállapitható vérszinttipusok demonstrálására egy uj antiepileptikum, a DENEGYT vérszintjét mutatjuk be 10 napos kezelés során.

Látható, hogy ha az állatokat naponta kétszer kezeljük a jelzett vegyülettel, és a kezelés előtt és után 1 órával mindennap vért veszünk, nem alakul ki magas vérszint, tehát a vegyület a vérben a szubakut kezelés ellenére nem kumulálódik.

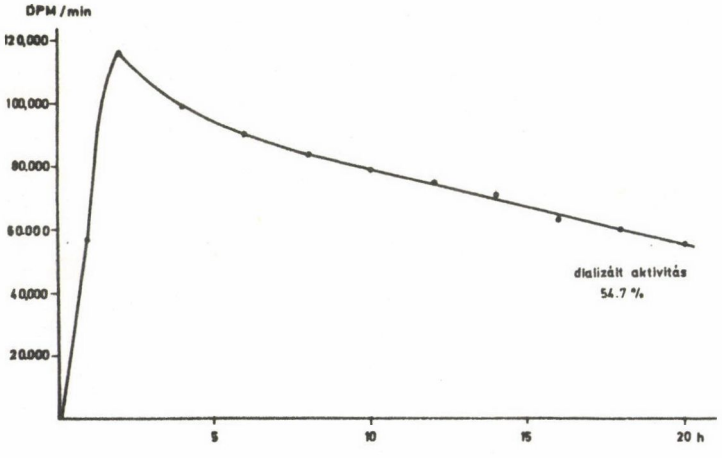
Az előzőekben különféle vérszinttipusokat mutattunk be, de nem beszéltünk arról, hogy mi történik a vegyülettel a vérben. Az ilyen vizsgálatainkat a

Dózis: 10 mg/Kg p.o.
+ - kezelés előtt
● - kezelés után 1 órával



5. ábra

^{14}C-nel jelzett DENEGYT vérszintje subacut kezelés mellett



6. ábra

Jelzett Pirazocillinnel kezelt patkányok szérumának dializiseredményei

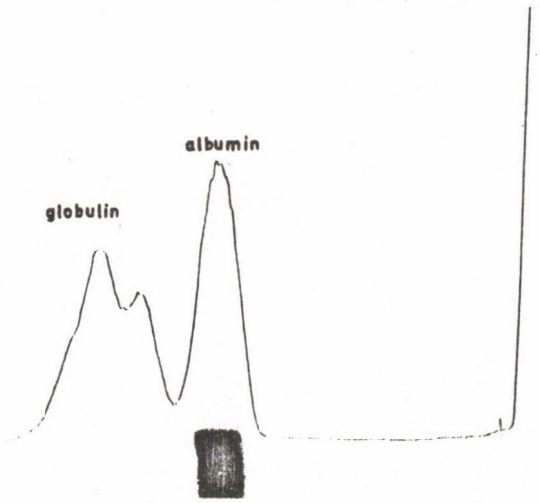
vérszint maximumában, illetve későbbi időpontban végezzük. Először megállapitjuk, hogy az aktivitás a szérumban vagy a vörösvértestekben található-e, és milyen a százalékos megoszlás a két frakció között. Ezután dializissel megvizsgáljuk, hogy az aktivitás hány százaléka van a szérumban szabadon, illetve fehérjéhez kötött formában.

A 6. ábrán látható, hogy az aktivitás lazán kötődik a szérumfehérjékhez, mivel róluk 15 órás folyamatos dializissel 54,7 %-ban ledializálható.

A 7. ábra a Pirazocillinnel kezelt állatok szérum-elektroforetikus vizsgálatát mutatja. Ebből kiderül, hogy a szérumban a még fehérjékhez kötött aktivitás a szérum albuminfrakciójához kötődik.

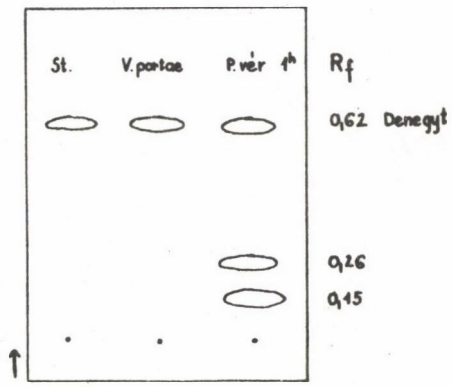
Az előbbieknél nagyobb jelentőségü annak az eldöntése, hogy a vegyület a vérben eredeti vagy metabolizált formában van-e jelen, illetve hogy a felszivódás következtében szenvedett-e változást. Ezen vizsgálatainkat általában radiokromatográfia segitségével végezzük. A vért, a rendszerint kis koncentráció miatt, extraháljuk, az extraktumokat bepároljuk, kromatografáljuk, és kontakt autoradiográfiával megállapitjuk a metabolitok számát és R_f-értékeit.

A 8. ábrán látható, hogy a v. portaen keresztül elvéreztetett állatból kapott szérumban csak az eredeti anyag mutatható ki, mig a perifériás vérben



7. ábra

Jelzett Pirazocillinnel kezelt patkányok szérumrenogramjának autoradiogramja

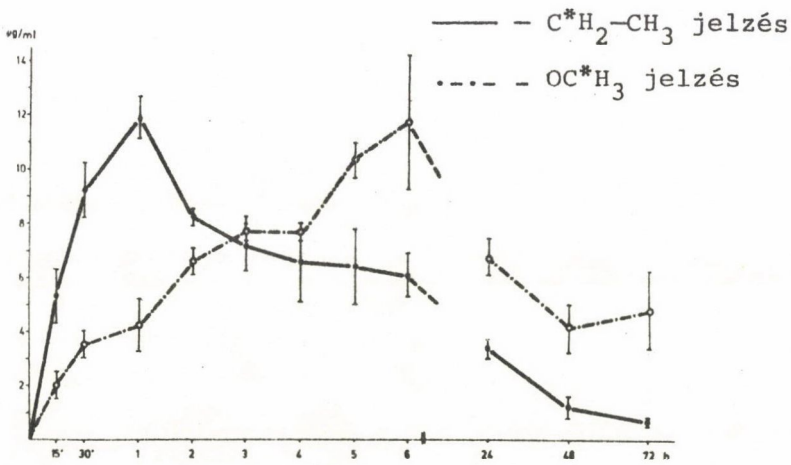


8. ábra

DENEGYT szérumkromatogram

már megjelennek a keletkezett metabolitok. Ez azt bizonyitja, hogy a vegyület a gyomor-béltraktusban nem szenved változást, és a metabolizáció helye valószinüleg a máj.

A kromatográfia elhanyagolása, illetve a jelzés poziciójának helytelen megválasztása félrevezető eredményekhez vezethet. A 9. ábra kétféle jelzés után kialakult vérszintértékeket mutat, egy metoxi csoportokat tartalmazó nyugtatónál /Grandaxin/.



——— - $C^*H_2-CH_3$ jelzés

·---· - OC^*H_3 jelzés

9. ábra

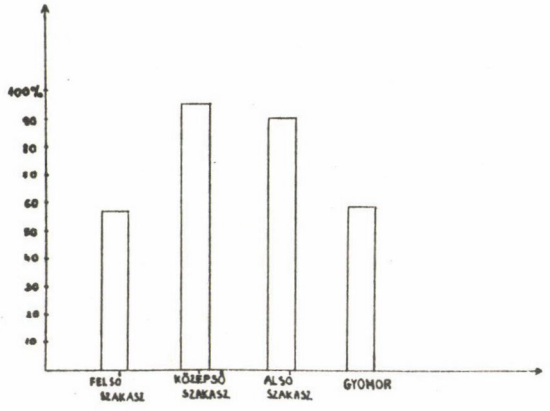
Két pozicióban ^{14}C-vel jelzett grandaxin vérszintje orális kezelés után

Látható, hogy a két, különböző helyen jelzett vegyület vérszintje jelentősen eltér. Megállapitható, hogy a metoxi-csoporton történő jelölés helytelen volt, mivel a jelzett csoportok leszakadnak, s részben széndioxid formájában kiürülnek, részben a jelzett szén szénforrásul szolgálhat különféle molekulák szintéziséhez. A leszakadás azonban folyamatos, és csak későbbi időpontban indul meg, ezért

röviddel a kezelés után a két vérszint még nem különbözik lényegesen egymástól, de a későbbi szakaszokban keletkező és a vérben tartósan jelenlévő biometabolitok aktivitása hozzáadódik a még nem metabolizált vegyület aktivitásához, igy a metoxi-jelzésnél lényegesen magasabb és elhuzódóbb vérszint alakul ki. A két vérszint közül tehát az etil-csoporton jelzett Grandaxin révén kialakult vérszintérték mutatja helyesen a hatásért felelős molekularész sorsát a vérben.

A félvezető eredmények azonban nemcsak a több poziciójú jelzéssel küszöbölhetők ki, hanem szérum, illetve szerv-homogenizátumok kromatográfiás analizisével is.

Miután tisztáztuk a vegyület vérszintjének alakulását, valamint a vegyület vérbeni sorsát, meghatározzuk felszivódási helyét. Ilyen esetekben izoláljuk a gyomor-béltraktus különféle részeit, és az izolált részekben injiciáljuk a vizsgálandó anyagot. A kezelés után különböző időpontokban meghatározzuk az izolált szakaszokban visszamaradt radioaktivitást.



10. ábra

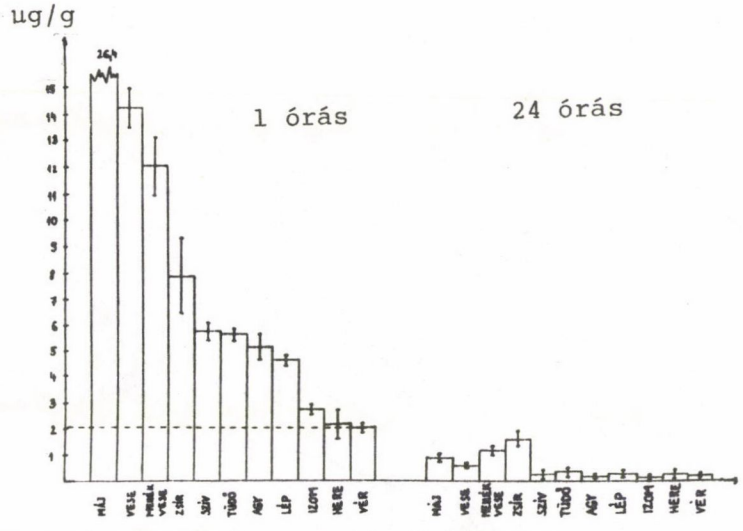
DENEGYT felszivódása gyomor-béltraktusból

A 10. ábra a DENEGYT felszivódását mutatja a gyomor-béltraktus különböző szakaszaiból.

A felszivódás után a következő feladat a vegyület szervekben való megoszlásának vizsgálata. Ez fontos információkat ad arra vonatkozólag, hogy a vegyület mutat-e valamely szervben specifikus akkumulációt; esetleg felhivja a figyelmet más irányu vizsgálatokra, és óvatosságra int a leendő gyógyszer alkalmazásával kapcsolatban /teratológia/.

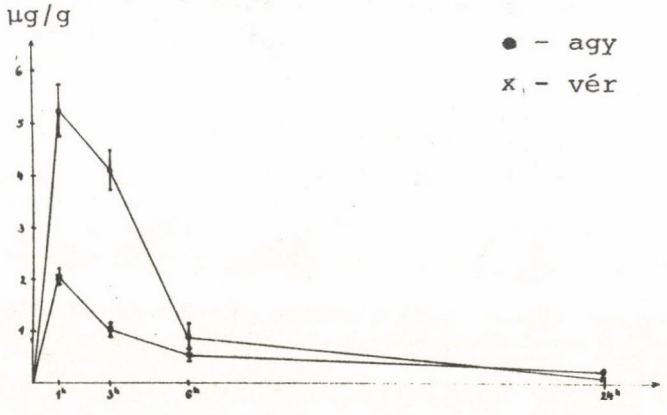
Szervmegoszlási vizsgálatokat legalább két időpontban végzünk; egy korábbi és egy későbbi szakaszban. A vizsgált szerveket a vegyület farmakológiai hatásától függően választjuk meg. Sok esetben a specifikus szervre vonatkozó vizsgálatokat is végzünk annak eldöntésére, hogy a vegyület támadáspontja és specifikus felhalmozódása egybeesik-e. A következőkben a jelzett DENEGYT szervszintértékeit mutatjuk be, melyeket a kezelés után 1 és 24 órával mértünk.

A 11. ábrán látható, hogy a DENEGYT a kezelés után 1 órával minden vizsgált szervben nagyobb koncentrációban van jelen, mint a vérben. A 24 órás értékek azonban a vegyület gyors eliminációját bizonyitják.



11. ábra

DENEGYT szervmegoszlása patkányszövetekben orális kezelés után



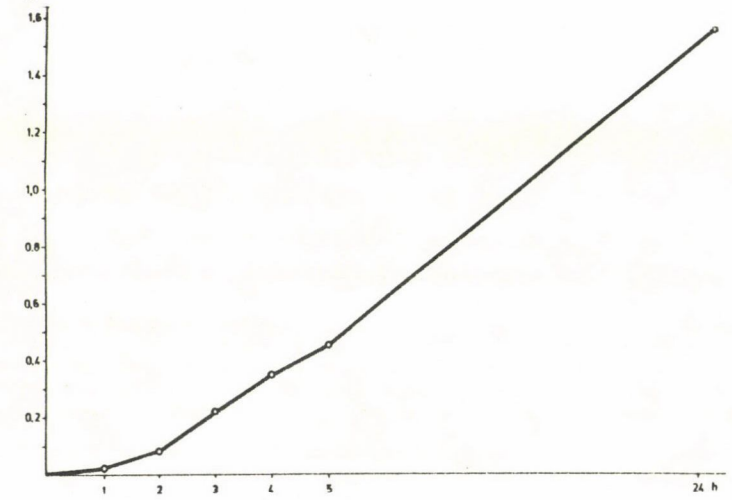
12. ábra

^{14}C-nel jelzett DENEGYT agyszintje patkányokon, orális kezelés mellett

Specifikus szervre vonatkozó vizsgálatokat végeztünk a DENEGYT agyban történő kumulációjának bizonyitására. Az agyban háromszor akkora aktivitásértékeket mértünk, mint a vérben /12. ábra/. Radiokromatográfiás módszerrel kimutattuk, hogy az agyban talált radioaktivitás eredeti, változatlan anyagnak felel meg.

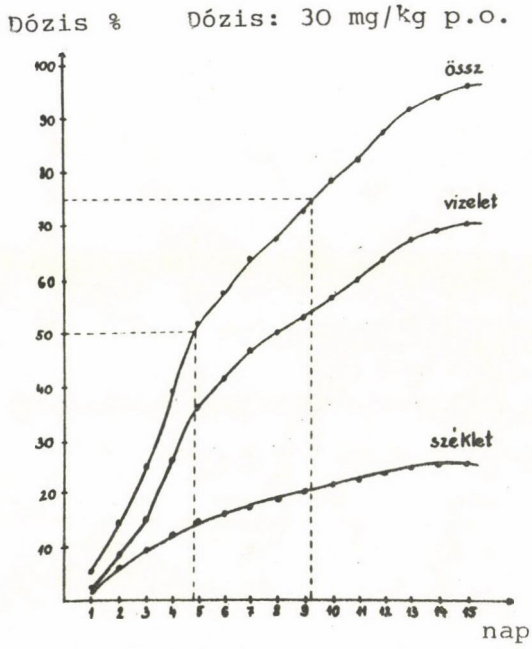
A szervszint vizsgálata után megvizsgáljuk a vegyület kiválasztódási viszonyait is. Igy pl. az epeürülést ugy vizsgáljuk, hogy a ductus choledochust kanüláljuk, és az epét kivezetjük. A kiürült epe aktivitásából és mennyiségéből kiszámitjuk a máj által az epén keresztül kiválasztott anyag mennyiségét. Vannak olyan vegyületek, melyek jelentős mértékben választódnak ki az epével, pl. a Grandaxin is. A 13. ábra azt mutatja, hogy a beadott aktivitás mintegy 34 %-a az epével választódik ki. Megállapitottuk, hogy a vegyület, illetve metabolitjai nem vesznek részt enterohepatikus körforgásban, mivel, ha az epét intakt állatnak adtuk be, vizeletében aktivitást nem tudtunk kimutatni.

A jelzett vegyületek kinetikai vizsgálatához tartozik a gyógyszerek vizelettel és széklettel történő kiürülésének ellenőrzése is. Erre a célra speciális metabolikus edényeket



13. ábra

Etil helyzetben jelzett grandaxin epével történő kiválasztódása



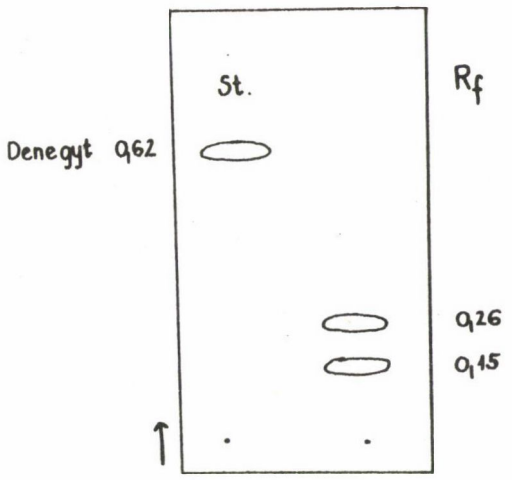
14. ábra

M-451 kiürülése a vizelettel és széklettel, orális kezelés után

alkalmazunk, melyekben a vizeletet a széklettől elkülönitve tudjuk gyüjteni. A legtöbb anyag 24 órán belül kb 50 %-ban kiürül a szervezetből, vannak azonban igen lassan és fokozatosan kiürülő vegyületek is. A 14. ábra egy koleszterinszintézist gátló klórfenoxi-ecetsav származék, az M-451 jelü vegyület, vizelettel és széklettel történő kiürülését mutatja.

Az aktivitás a vizelettel és széklettel egyenletesen, folyamatosan és lassan távozik, és 14 nap alatt ürül ki a patkány szervezetéből.

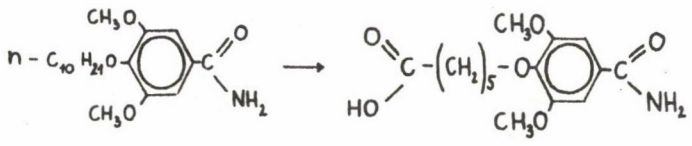
Az eddig tárgyaltak jelentik a farmakokinetikai vizsgálatok első lépését. A második és legnehezebb terület a gyógyszerek metabolizmusának tisztázása. Ezen a területen is óriási jelentősége van a jelzett vegyületeknek, mivel a radioaktivitás megkönnyiti a kis mennyiségben keletkező metabolitok detektálását. A legnagyobb problémát azonban a metabolitok tiszta formában való izolálása jelenti. Ez többszöri kromatográfiás elválasztást igényel, és az amugyis kis mennyiségben jelenlévő metabolitok a kromatográfiás eljárások során vagy elvesznek, vagy nem állnak kellő mennyiségben az analitikusok rendelkezésére. A metabolitokat rendszerint a vizeletből izoláljuk, miután előzőleg megállapitottuk számukat és R_f-értéküket. A jelzett DENEGYT-tel kezelt állatok vizeletének kromatogramján /15. ábra/ látható, hogy a vegyület két radioaktiv metabolit formájában ürül ki, melynek R_f értéke 0,15 és 0,26.



15. ábra

DENEGYT-tel kezelt állatok vizeletének kromatogramja

A 0,26 R_f értékü metabolit ugy jön létre, hogy a DENEGYT deciloxi része lerövidül és az alábbi szerkezetü biológiailag inaktiv vegyület alakul ki:



ÖSSZEFOGLALÁS

A farmakonok szervezeten belüli sorsának követésében az /elsősorban ^{14}C-nel/ jelzett vegyületekkel végzett vizsgálatok a legegyszerübb módszerek, amelyek a legtöbb információt szolgáltatják a farmakológus, de később a klinikus számára is.

Beérkezett 1973. szeptember 13-án.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/626-628

TUMORSZCINTIGRÁFIÁS VIZSGÁLATOK ^{169}Yb-CITRÁTTAL

Pál I.*, Karika Zs.**, Tarján Gy.**, Füzy M.**
*MTA Izotóp Intézete, Budapest,
**Országos Onkológiai Intézet, Budapest

ELŐZETES KÖZLEMÉNY

Az MTA Izotóp Intézetében előállított ^{169}Yb-citrát komplex alkalmasnak látszik lágyszöveti daganatok és a csontváz pozitiv szcintigráfiájára.

Сцинтиграфия опухолей с помощью цитрата ^{169}Yb
Пал, И., Карика, Ж., Тарян, Дь., Фюзи, М.

Изготовленный в Институте изотопов ВАН комплекс цитрата ^{169}Yb показывается пригодным для положительной сцинтиграфии опухолей мягких частей и скелета.

Tumor Scintigraphic Investigations with ^{169}Yb Citrate
Pál, I., Karika, Zs., Tarján, Gy., Füzy, M.

The ^{169}Yb citrate complex of the Institute of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences semms to be applicable to the scintigraphy of soft parts tumors and the skeleton.

A nukleáris medicinával foglalkozó szakemberek részéről egyre növekszik az igény olyan radiofarmakon iránt, amely kifejezett tumoraffinitással rendelkezik, és lehetővé teszi az elsődleges vagy áttételes daganatok "pozitiv" szcintigráfiás ábrázolását.

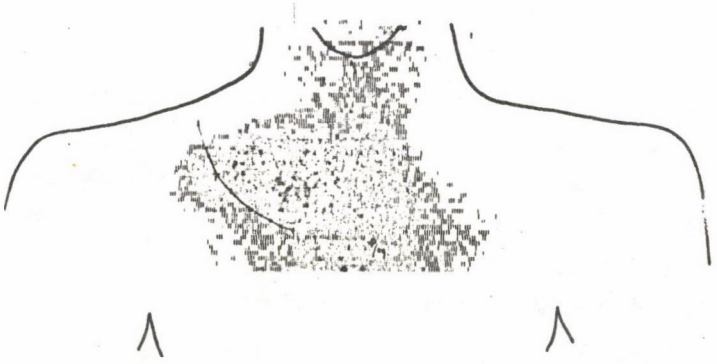
Daganatok pozitiv szcintigráfiás kimutatására többek között elsősorban ^{64}Cu-edta, $^{99}Tc^{m}O_4^-$, $^{197}HgCl_2$ [1], ^{197}Hg-Neohydrin, $Na_2{}^{75}SeO_3$, ^{75}Se-methionin, $^{111}InCl_3$, $^{113}In^{m}Cl_3$, $^{113}In^{m}$-edta, $^{115}In^{m}$-edta [2], ^{67}Ga-citrát alkalmas. Az utóbbi években a ^{67}Ga-citrát alkalmazásáról olvashatunk legtöbbet az irodalomban, sőt, a közelmultban hazai tapasztalatokról is jelentek meg közlemények [3,4]. A ^{67}Ga-citrátnál hátrányt jelent a nagy beszerzési költség /kb. 3600 Ft vizsgálatonként/, amit farmakológiai tulajdonságai és a ciklotronban történő előállitás indokolnak.

Az MTA Izotóp Intézetében $^{168}Yb(n,\gamma)^{169}Yb$ magreakcióval ^{169}Yb-citrát komplexet állitottunk elő [5]. A ^{169}Yb fizikai felezési ideje 32 nap, elektronbefogással bomlik, γ-sugárzó /0,063 MeV 45%, 0,110 MeV 18%, 0,131 MeV 11%, 0,177 MeV 22%, 0,198 MeV 35%, 0,308 MeV 10%/.

Hisada és munkatársai[6] állatkisérletekben, majd humán tumordiagnosztikai vizsgálatokban igazolták a ^{169}Yb-citrát tumoraffinitását.

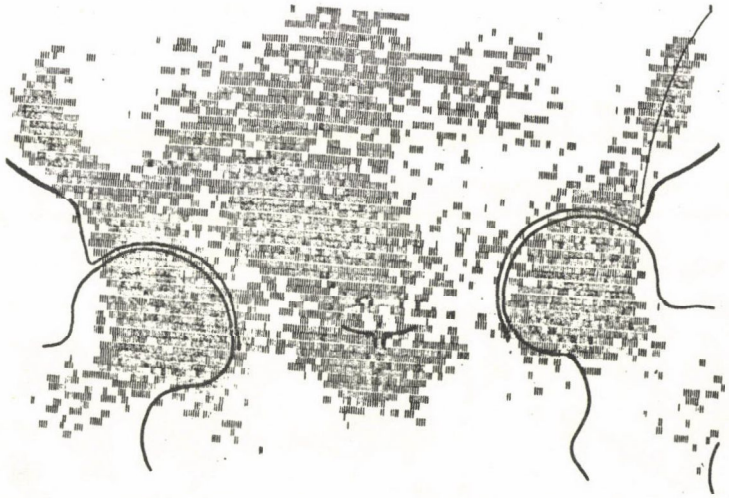
Állatkisérletes vizsgálatainkban megállapitottuk, hogy i.v. adás után 24 órával a vér és izom fajlagos aktivitása nagymértékben csökken, mig a különféle tipusu kisérletes állattumorok fajlagos aktivitása viszonylag nagy. A tumor az indikátordózis 0,5-3%-át velveszi. A tumor/izom halmozási arány 6-30 : 1 érték között változott, a tumor tipusától és életkorától függően. A szervek közül a csontváz és a máj mutat jelentős affinitást az ^{169}Yb-citráttal szemben. Toxicitásra utaló tüneteket az állatkisérletek során nem tapasztaltunk.

Az állatkisérletek biztató eredményei után emberi lágyrész-daganatok ^{169}Yb-dusitó képességét tanulmányoztuk. Daganatos betegeknek 0,4 - 1 mCi ^{169}Yb-citrátot adtunk intravénásan, és a szcintigráfiás vizsgálatot 24 - 168 óra mulva végeztük, Selo DS7 feltérképezővel. Vizsgálataink eredményét néhány eset bemutatásával szemléltetjük.



1. ábra

I.S.férfibeteg 850 µCi ^{169}Yb-citráttal készült 24 órás szcintigramja /Dg: Tu.Colli/



2. ábra

K.J.-né ^{169}Yb-citráttal készült 168 órás szcintigráfiás felvétele /Dg: carcinoma cylindricocellulare adenomatosum/

Az 1. ábrán bemutatott daganat, a szövettani vizsgálat szerint, cc. planocellulare volt.

A 2. ábrán kifejezett dusulás látható a végbéldaganatban, emellett jól látható, hogy az ^{169}Yb-citrát a csipőcsontban is jól dusul. Ez a tény lehetőséget adhat malignus csontelváltozások kimutatására.

ÖSSZEFOGLALÁS

Tapasztalataink alapján az ^{169}Yb-citrát alkalmasnak látszik a lágyszöveti daganatok és a csontváz pozitiv szcintigráfiás vizsgálatára, az alábbi tulajdonságai alapján:

a/ lágyszöveti tumoroknál az extrém kis izom- és vérháttér lehetővé teszi a tumorkép világos elkülönitését;

b/ a csonthalmozódás révén a tumor anatómiai bejelölése könnyebb, segitségével csontszcintigráfia is végezhető;

c/ az ^{169}Yb reaktorban előállitható, 32 napos felezési ideje pedig hosszu tárolást biztosit.

IRODALOM

1. *Vándor F., Szabó I.*, Radiohigany-vegyületek a rosszindulatu daganatok diagnosztikájában, Izotóptechnika /Budapest/ 16/1973/476
2. *Pál I., Klityina G., Konyár É., Farkas Gy.*, Gamma-sugárzó izotópokkal /^{64}Cu, ^{72}Ga, ^{115}In^{m}, ^{203}Hg/ jelzett tumoraffin vegyületek vizsgálata kisérletes állattumorokon, IV.M.Radiol.Kongr., Debrecen, 1968
3. *Zsebők Z., Mártonffy K., Esztergályos J.*, Pozitiv tumorszcintigráfiás vizsgálatok ^{67}Ga-citráttal, Izotóptechnika /Budapest/ 16/1973/492
4. *Mártonffy K.*, Pozitiv tumorszcintigraphiás vizsgálatok ^{67}Ga citráttal, Orvosi Hetilap 114/1973/2233
5. *Pál I., Földes J., Krasznai I.*, Farmakológiai jelentés az ^{169}Yb-edta, ^{169}Yb-citrátról az Országos Gyógyszerészeti Intézetnek, 1970, kézirat
6. *Hisada, K., Ando, A., Hiraki, T., Takino, H., Kurata, K.*, A New Tumor Scanning Agent - ^{169}Yb-Citrate, J.Nucl.Med. 14/1973/406

Beérkezett 1973. október 15-én.

HIREK

IZOTÓPOK ORVOSI FELHASZNÁLÁSA

Szeptember 28-án a Rádióban beszélgetés hangzott el Hernádi Tiborral, a SOTE Radiológiai Klinikája munkatársával az emberi test egyes szervei radioaktiv feltérképezéséről, valamint az izotópos in vitro vizsgálati módszerekről.

A brassói megyei klinika mellett müködő izotóplaboratórium munkájáról készitett riportot a romániai Előre c. napilap /szept. 28./

A Bhabha Atomic Research Centre-ben befejezéshez közeledik az orvosi termékek sterilezésére szolgáló besugárzó üzem épitése /ISOMED/. A januárra várható üzembehelyezést követően a berendezéssel sebvarrófonal, egyszer használatos katéterek, infuziós és transzfuziós szerelvények, injekciós tük stb. sterilezését tervezik. Augusztusban kétnapos kollokviumot rendeztek az orvosi termékek sugárzásos sterilezéséről.
Nuclear India, junius-julius.

IZOTÓPOK AZ IPARBAN

A Természet Világa szeptemberi számában Rózsa Sándor, az MTA Izotóp Intézete tudományos osztályvezetője az izotópos mérőmüszerek gyakorlati felhasználásáról irt cikket.

NUKLEÁRIS ENERGETIKA

A fejlődő országok energiaproblémájának megoldásában jelentős szerepet kap a nukleáris energia. 14 fejlődő ország /Argentina, Bangla Desh, Chile, EAK, Fülöp-Szigetek /Luzoni kerület/, Görögország, Jamaika, Jugoszlávia, Koreai Köztársaság, Mexikó, Pakisztán, Szingapur, Taiföld, Törökország/ helyzetét vizsgálta meg e szempontból a NAÜ. A fejlődő országok közül Bulgáriának, Braziliának, a Csehszlovák Szocialista Köztársaságnak, Indiának, Mexikónak, Pakisztánnak és a Koreai Köztársaságnak van épülő vagy müködő atomerőmüve. Kapacitásuk összesen mindössze 5200 MW-ot tesz ki /az 1972 évi összes beruházott villamos kapacitásukat 56 000 MW-ra becsülik/. Az iparilag fejlett országokban 1980-ra a nukleáris energia részaránya az összteljesitmény 16%-a lesz. 1990-re a világ nukleáris kapacitása az energiatermelés összkapacitásá-

nak 30%-ára, 2000-re pedig 50%-ára nő. 6-8 év telik el általában egy erőmü megrendelése és átadása között. A berendezések költsége stabilizálódott, s a fütőanyagciklus költségei sem változnak. Ez utóbbi lehet az egyik fő oka annak, miért nő az atomerőmü-megrendelések száma.

Az ügynökségi felmérés egyik célja a kis atomerőmüvek iránti igény felmérése volt. A megvizsgált 14 országban 200 MW-nál kisebb kapacitás iránt nem várható igény.
IAEA General Assembly Press Release, C/XVII/5, szeptember 21.

NEMZETKÖZI EGYÜTTMÜKÖDÉS

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség ülésszakán negyedszer is Sigvard Eklundot választották meg főigazgatónak.
IAEA General Assembly Press Release C/XVII/3, szeptember 18.

A NAÜ közgyülésről Osztrovszki György, az Országos Atomenergia Bizottság elnöke adott tájékoztatást. A vita során a világ energiahelyzetével foglalkoztak, majd értékelték a NAÜ lehetőségeit és feladatait, végül pedig az atomsorompó-egyezmény végrehajtásával kapcsolatos kérdéseket vitatták meg, mivel ennek az egyezménynek az ellenőrzése az Ügynökség feladata. A magyar kormány 1971-ben hagyta jóvá a biztositéki egyezményt, s a végrehajtásával kapcsolatos tennivalókat a kormány megbizása alapján, az OAB, illetve az MTA Izotóp Intézete látja el. A közgyülés a magyar ellenőrzési rendszert jónak minősitette.
Népszava, Komárommegyei Dolgozók Lapja, szeptember 26.

RENDEZVÉNYEK

Szeptember 3-án nyilt meg a Nemzetközi Atomenergia Ügynökségnek a környezet radioaktiv szennyeződésével foglalkozó szakmai tanácskozása a TIT Bocskai uti természettudományi studiójában. 15 európai ország, Kanada és az Egyesült Államok mellett képviseltette magát az Egészségügyi Világszervezet is.
Magyar Nemzet, szeptember 4.

Az Európai Gazdasági Közösség Bizottsága - az NSZK-beli Bundesforschungsanstalt für Lebensmittelfrischhaltunggal karöltve - 1973. október 24-25 között Karlsruheban nemzetközi kollokviumot rendezett a besugárzott élelmiszerek azonositásáról.
Kerntechnik, szeptember.

1974. ÉVI KIVONATOS NEMZETKÖZI RENDEZVÉNYNAPTÁR

Jan.9-11: Conference on Optics in Diagnostic Medicine
Tucson, Arizona, USA, — Optical Society of America, 2100 Pennsylvania Ave. N.W., Washington, D.C.20037 USA

febr.12-15: International Symposium on Radiopharmaceuticals
Atlanta, Georgia, USA — The Society of Nuclear Medicine, 211 East 43rd Street, New York, N.Y. 10017, USA

febr.27-márc.1: Scintillation and Semiconductor Symposium
Washington — IEEE Hdgs, 345 East 47th St. New York, N.Y.10017 USA

márc.10-16: 10th Symposium Neuroradiologicum
Punta del Este, Uruguay — Dr. Andrés de Tenyi, Hospital de Clínicas, Piso 2, Montevideo, Urugay

máj.20-26: 7th World Congress on Prevention of Occupational Hazards and Diseases
Dublin — 7th World Congress, Ansley House Dublin 4, Ireland

máj.27-30: International Congress on Iron and Steel
Düsseldorf — Verein Deutscher Eisenhüttenleute, Postfach 8209, 4-Düsseldorf, BRD

máj.29-jun. 2: 5th International Congress of Cytology
Miami Beach, Florida, USA — Prof. A. Meisels, University of Laval, 1050 Chemin-Ste-Foy, Quebec City 6, Que., Canada

jun.2-6: 2nd International Symposium on Radiation Protection - Philosophy and Implementation
Aviemore, Inverness-shire, Scotland — Miss Sylvia Cross, Secretary's Department, CEGB, Room 1324, Sudbury House, 15 Newgate Street, London EC1A 7AU, UK

jul.9-11: 1st World Congress on Medicine and Biology of the Environment
Paris — SOCFI, 7 rue Michel-Ange, 75016 Paris, France

jul.14-20: 5th International Congress of Radiation Research
Seattle, Washington, USA — Dr.Warren K.Sinclair, Secretary General, 5th Int.Congress of Radiation Research, Argonne National Lab., 9700 South Cass Ave., Argonne, Ill., 60439 USA

aug.: 7th Radiation Chemistry Conference
Lucas Heights, Australia — Mr.E.A.Palmer, Executive Officer, Australian Institute of Nuclear Science and Engineering, Private Mail Bag, P.O. Sutherland, N.S.W. 2232, Australia

aug.12-20: 10th Congress of the International Society of Soil Science
Moszkva — The Organizing Committee, 10th ISSS Congress, Moscow State University, Sub-Faculty of Pedology, Pyzevsky per.7, Moscow 117, USSR

ősz: 4th International Conference on Luminescence Dosimetry,
Krakkó — Dr.T.Niewiadomski, Institute of Nuclear Physics, ul.Radzikowskiego 152, Cracow 23, Poland

szept.1-7: 11th International Congress for Microbiology
Tokyo — D.Ushiba, Microbiology Division, Science Council of Japan, 22-34, Ropponzi 7 chome, Minato-ku, Tokyo 106, Japan

szept.9-12: Tercentenary of Scientific Hydrology
Paris — Division of Hydrology, UNESCO, 7, Place de Fontenoy, 75700 Paris, France

szept.15-19: 9th Congress of the Federation of Latin Country Radiologists and 26rd National Congress of the National Italian Society of Radiology and Nuclear Medicine
Velence — Secretariat, Istituto di Radiologica dell'Universitá di Padova, Sedi di Verona, 37100 Verona, Italy

szept.30-okt.4: 1st World Congress of Nuclear Medicine

Tokyo — Dr.Sadatake Kato, Treasurer, World Federation of Nuclear Medicine and Biology, Japanese Society of Nuclear Medicine, c/o 2nd Dept. of Medicine, University of Tokyo, 7-3-1, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan

okt.: 4th International Symposium on Packaging and Transportation of Radioactive Materials,

Miami, Florida, USA — Mr.L.B.Sheppard, Process Design Section, Chemical Technology Div. Oak Ridge National Laboratory, P.O.B. Oak Ridge, Tenn. 37830 USA

okt.20-26: 11th International Congress on Cancer

Firenze — General Secretariat, Istituto Nazionale Tumori, Via G.Venezian 1, 20133 Milano, Italy

Időpont ismeretlen: 3rd International Conference on Groundwater Tracing

Ljubljana — K.Gospodarnič, Postojna, Yugoslavia, Titov Trg 2

Időpont ismeretlen: European Congress on Radioisotopes

Athén — P.Papadimitropoulos, Foreign Relations Service, Greak Atomic Energy Commission, Aghia Paraskevi-Attica, Athens, Greece

IAEA RENDEZVÉNYEK /KÖZELEBBI HELY ÉS IDŐPONT ISMERETLEN/

Symposium on the Effectiveness of INIS in Relation to Other Mission- and Subject-oriented Information Systems

Symposium on Siting of Nuclear Plants

Symposium on Radiological Impacts of Releases from Nuclear Facilities into Aquatic Enviroments

Seminar on Evaluation of Population Doses and Application of Radiological Safety Standards

Symposium on Isotopes in Ground-Water Hydrology

Symposium on Ionizing Radiation for Sterilization of Biomedical Products and Biological Tissues

Symposium on Dynamic Studies with Radioisotopes in Clinical Medicine and Research

FAO/IAEA Symposium on Isotope Ratios as Pollution Source Indicators

FAO/IAEA Symposium on Sterility Principle for Insect Control

VEGYES HIREK

A NSZK Szövetségi Belügyminisztériuma kutatási programot indit lakó- és egyéb helyiségekben kapható, földi, illetve kozmikus eredetü sugárterhelés felmérésére.
Kerntechnik, augusztus

Az NSZK uj DIN 6828 szabványa rögziti azon előirásokat, amelyeket a sugártechnikai berendezések mechanikai biztonsága érdekében be kell tartani. Az 1. lap az előállitóra, a 2. lap pedig az üzemeltetőre vonatkozó előirásokat tartalmazza.
Kerntechnik. augusztus

UJ KÖNYVEK

Technical Report Series No.145, Tracer Techniques in Sediment Transport, IAEA, Vienna, 1973

J. Shapiro, Radiation Protection - A Guide to Scientists and Physicians, Harvard University Press - Oxford University Press, 1973, 339 o., 7,50 font /füzve 3,50 font/

J.M. Vaughan, The Effects of Irradiation on the Skeleton, Clarendon Press, Oxford, 1973, 297 o., 7,75 font.

MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA KÖNYVTÁRA

309024

HU ISSN 0004-721

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 12. SZÁM (1973)

A MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA IZOTÓP INTÉZETE

IZOTÓPTECHNIKA

16. ÉVFOLYAM 12. SZÁM

BUDAPEST 1973. DECEMBER

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA

Szerkeszti és kiadja a Magyar Tudományos Akadémia Izotóp Intézete

Szerkesztő bizottság:

Bába Miklós
Fehér László
Földiák Gábor, a kémiai tudományok doktora /felelős szerkesztő/
Gróz Péter
Illy József /titkár/
Kocsár László, az orvostudományok kandidátusa
Koncz József
Máté Ferenc, a mezőgazdasági tudományok kandidátusa
Medveczky László, a fizikai tudományok kandidátusa
Tóth Béla, a kémiai tudományok kandidátusa

A szerkesztőség címe: MTA Izotóp Intézete, 1525 Bp. 114, Pf. 77.
Telefon: 166-547/154

Számunk írói:

Antoni Ferenc, az orvostudományok doktora,
Semmelweis Orvostudományi Egyetem Orvosi Vegytani Intézete, 1088 Budapest, Puskin u.9.

Bártfai Szabó László,
OVH Vízkészletgazdálkodási Központ, 1363 Budapest, Pf.352

Dorogi Imre,
Mosonmagyaróvári Agrártudományi Egyetem, 9201 Mosonmagyaróvár, Pf.57

Erdélyszky Zsigmond, a fizikai tudományok kandidátusa,
Budapesti Műszaki EGyetem Vízgazdálkodási és Vízépítési Intézete, 1111 Budapest, Müegyetem rkp 3/9

Fehér László,
Fővárosi Közegészségügyi és Járványügyi Állomás, 1393 Budapest, Pf.412

Kelemen László,
Országos Vízügyi Hivatal, 1394 Budapest, Pf.351

Kovács József, a kémiai tudományok kandidátusa
Központi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet, 1022 Budapest, Herman O.ut 15

Pavlik Oszkár,
MTA Izotóp Intézete, 1525 Budapest, Pf.77

Mészner József,
Vízgazdálkodási Tudományos Kutató Intézet, 1428 Budapest, Pf.44

Nagy József,
Kossuth Lajos Tudományegyetem Izotóplaboratóriuma, 4010 Debrecen, Pf.8

Bojtor Iván,
Országos "Frédéric Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, 1775 Budapest, Pf.101

Illés Ágnes,
Magyar Hiradástechnikai Egyesülés Számitástechnikai és Szervezési Központja, 1525 Budapest, Pf.33

Helyesbítés

10. számunkban Gábor Róza nevét rövidítve adtuk meg, ezért elnézést kérünk.

Felelős kiadó: Földiák Gábor, az MTA Izotóp Intézetének igazgatója
Készült az MTA Központi Fizikai Kutató Intézetének házi sokszorositójában F.v. Nagy Károly
Engedélyszám: III.6400/s/215/72. Budapest Indexszám: 25.399
Törzsszám: KFKI-73-9006

1973. 12. szám

Terjeszti a Magyar Posta. Előfizethető bármely postahivatalnál, a kézbesitőknél, a Posta hirlapüzleteiben és a Posta Központi Hirlapirodánál //KHI/, Budapest V., József nádor tér 1., Távbeszélő:180-850, Postacim: Posta Központi Hirlapiroda, 1900 Budapest/, 215-96162 pénzforgalmi jelzőszámlára

Évi előfizetési dija: 240.-Ft Egyes szám ára: 20.-Ft
Példányszám: 250

T A R T A L O M

NUKLEÁRIS TECHNIKA ÉS KÖRNYEZETVÉDELEM

A nukleáris technika alkalmazása a környezetvédelemben 639
Antoni F., Bártfai Szabó L., Dorogi I., Erdélyszky Zs., Fehér L., Kelemen L., Kovács J., Pavlik O.

Применение ядерной техники в защите окружающей среды

The Use of Nuclear Techniques in Environmental Protection

Javaslat a Duna radioaktiv szennyezésének nemzetközi ellenőrzésére, a Duna menti országok atomenergia-fejlesztési tervének figyelembevételével 654
Kelemen, L., Bártfai Szabó L., Mészner J.

Предложение для осуществления международного контроля радиоактивной загрязненности Дуная, имея в виду планы развития ядерной энергетики придунайских стран

A Proposition for the International Control of Radioactive Contamination of the Danube in Accordance with the Atomic Energy Development Plans of Danube Countries

Modern radioaktiv hulladékkezelő berendezések Csehszlovákiában, Lengyelországban és a Szovjetunióban 663
Pavlik O.

Современные установки для переработки радиоактивных отходов в Чехословакии, в Польше и в СССР

Up-to-Date Facilities for Radioactive Waste Disposal in Czechoslovakia, Poland and in the USSR

Mikromennyiségü ^{137}Cs meghatározása oldatokból 674
Nagy J.

Определение микроколичеств ^{137}Cs в растворах

Determination of Microquantities of ^{137}Cs in Liquids

Számitógép alkalmazása személyi filmdoziméterek kiértékelésére 679
Bojtor I., Illés Á.

Оценка пленочных индивидуальных дозиметров с помощью ЭВМ

Evaluation of Personal Film Dosimeters by Computer

HIREK 684

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/639-653

A NUKLEÁRIS TECHNIKA ALKALMAZÁSA A KÖRNYEZETVÉDELEMBEN*

Antoni F.[1], Bártfai Szabó L.[2], Dorogi I.[3], Erdélyszky Zs.[4], Fehér L.[5], Kelemen L.[6], Kovács J.[7], Pavlik O.[8].

1. Semmelweis Orvostudományi Egyetem Orvosi Vegytani Intézete, Budapest
2. OVH Vizkészletgazdálkodási Központ, Budapest
3. Mosonmagyaróvári Agrártudományi Főiskola
4. Budapesti Müszaki Egyetem Vizgazdálkodási és Vizépitési Intézete, Budapest
5. Fővárosi Közegészségügyi és Járványügyi Állomás, Budapest
6. Országos Vizügyi Hivatal, Budapest
7. Központi Élelmiszerellenőrző és Vegyvizsgáló Intézet, Budapest
8. MTA Izotóp Intézete, Budapest

/Érkezett 1973. junius 19-én/

Nukleáris eljárások a levegő, a talaj, a növények, élelmiszerek és a viz szennyezettségének megállapitására, tisztitási módszereinek ellenőrzésére.

Применение ядерной техники в защите окружающей среды
Антони, Ф., Бартфаи Сабо, Л., Дороги, И., Эрдейски, Ж., Фехер, Л., Келемен, Л., Ковач, Й., Павлик, О.

Ядерные методы для определения загрязнения воздуха, почвы, растений, пищевых продуктов и воды, а также для проверки их очищения.

The Application of Nuclear Techniques in Environmental Protection
Antoni, F., Bártfai Szabó, L., Dorogi, I., Erdélyszky, Zs., Fehér, L., Kelemen, L., Kovács, J., Pavlik, O.
Nuclear techniques for the determination of contamination of air, soil, plants, foods and water, and for the control of their decontamination.

BEVEZETÉS

Az urbanizáció, a különféle technikai, valamint kémiai kutatás, fejlesztés és alkalmazás, főként az utóbbi tiz évben, szükségszerüen aktuálissá tette a környezetvédelem vizsgálatát.

---

*Az Országos Atomenergia Bizottság felkérésére készitett tanulmány alapján. A tanulmányt az OAB Izotópalkalmazási Szakbizottsága 1973. április 18-án megtárgyalta.

A szennyeződések kialakulásáról, a különféle szennyező anyagok mozgásáról, az akkumuláció helyéről és mértékéről a hagyományos vizsgálati módszerek egyre kevésbé nyujtanak megfelelő pontosságu eredményeket. Igy például a kémiai növényvédelem ugrásszerüen fejlődött /a világon évente többmillió tonna jól alkalmazható - többféle - vegyszert gyártanak/; s bár eredetüket, hatásukat jól ismerjük, nem ismert az a mód, folyamat, ahogyan ezek az anyagok eltünnek környezetünkből.

Mennyiségi és eltérő minőségi viszonyok miatt, különösen fontos a mezőgazdasági és erdőgazdasági területekre juttatott növényvédőszerek és az ipari felhasználás eredményeként termelő gázok /SO_2, CO, CO_2/, aeroszolok és füstök további sorsának és hatásának vizsgálata.

A radioaktivitás mérésével és a nukleáris energia hasznositásával kapcsolatos kutatások olyan érzékenységü módszerek kidolgozásához vezettek, amelyek a környezetvédelmi problémák megoldásához is jól alkalmazhatónak látszanak.

A nukleáris technika területén a szennyeződések kialakulásának és változásának vizsgálatára számitásba vehető:

a/ a nyomjelzéses módszer és

b/ az aktivációs analizis,

bizonyos esetekben a szennyezettség mértékének csökkentésére, például szennyviz kezelésére, sugárzásos sterilizálásra

c/ a nagy sugárforrások.

Ez utóbbi eljárással vegyszeres kezelést lehet helyettesiteni /kisebb mennyiségü vegyszer felhasználása csökkenti a szekunder szennyeződések mértékét/.

A kis mennyiségben alkalmazott, nagy biológiai hatásu vegyületek felszivódásának és metabolizmusának vizsgálatát kizárólag a jelzett vegyületek tették lehetővé. Felhasználásukkal határozható meg továbbá a szennyeződések tartóssága is. A nukleáris technika felhasználásával sikerült a mütrágyázáshoz használt vegyületek mennyiségét is csökkenteni - a hasznositási adatok ismeretében -, s ez egyuttal azt jelenti, hogy a kisérő fémi szennyeződések várható hatása is csökkent.

A bioszféraprogram kifejezetten emberközpontu program, ezért nem térünk ki az emberre vonatkozó "megengedhető", illetve káros szintü anyagok dózisszintjére. Nem foglalkozunk a bioszféra szennyeződésével kapcsolatos általános problémákkal sem, hanem a környezetvédelem szempontjából számitásba vehető nukleáris technika kérdéseire szoritkozunk.

A NUKLEÁRIS TECHNIKA ALKALMAZÁSA A LEVEGŐ SZENNYEZETTSÉGÉNEK VIZSGÁLATÁBAN

A SZENNYEZŐDÉSEK FORRÁSAI ÉS FORMÁI

Az ipar és közlekedés nagy arányu fejlődésének következményeként elsősorban a levegő elszennyeződésével kell számolni. A levegőbe kerülő szennyező anyagok fizikai és kémiai hatásukkal egyaránt gátolhatják a normális életfolyamatokat. A kolloid méretü por és aeroszol az ultraibolya sugárzás csökkentésével, s igy a fotokémiai reakció gátlása által a növényzetre és az állatokra, a kén- és széndioxid pedig kémiai hatásával különböző szerkezeti anyagokra fejtheti ki káros hatását.

A levegőtisztasági problémák felmérése és megoldása szempontjából alapvető a szennyeződés kialakulásának vizsgálata, amelyhez számos megfigyelésre és széleskörü statisztikai adatgyüjtésre van szükség. Csak a tényezők ismeretében lehetséges egy adott térségben a légszennyezettség mértékének a veszélyét megfelelő valószinüséggel megbecsülni.

A levegő, por-, aeroszol- és gáznemü szennyeződésének, egy-egy szennyező anyag időbeli eloszlásának, valamint a légkörben való további sorsának meghatározása a környezetvédelem egyik legfontosabb feladata. Az izotópok felhasználásával foglalkozó szakemberek jelentős kutatási eredményekkel járultak már hozzá a környezetszennyeződési problémák megoldásához, még akkor, amikor ezek a kérdések nem voltak széles körben ismertek. Igy a szennyezettség eloszlásának meghatározására a jelzett vegyületek és utólag aktiválható finom eloszlásu fémporok /pl. Co/ mérésével korábban kivitelezhetetlen érzékenységü és megbizhatóságu módszer alkalmazására nyilt mód. Ezzel magyarázható, hogy a fejlett ipari államokban /Szovjetunió, Egyesült Államok, Japán/ az izotóptechnika ma már jelentős szerepet játszik a környezetszennyeződés elleni védelemben is.

A szennyező anyagok levegőben való megjelenését és tartózkodási idejét a növényzetre és az állatvilágra gyakorolt hatását izotópos nyomjelzőkkel /pl. ^{14}C beépitésével/ jól nyomon követhetjük. Az ilyen vizsgálat nyujtja a legtöbb felvilágositást a szennyezők forrásáról, diszperzitásáról és légkörben való további sorsáról. A radioaktiv nyomjelzők felhasználásának kitünő lehetőségei ellenére - sugárvédelmi megfontolásokból - ma ritkábban alkalmaznak radioaktiv izotópokat /^{85}K/, helyettük mindinkább a stabil izotópok és az aktiválásos analizisben jól alkalmazható, könnyen aktiválható nyomjelzők kerülnek előtérbe. Előreláthatólag a jövőben az aktivációval összekapcsolt nyomjelzés lesz a levegőszennyeződés vizsgálatának egyik leggyakrabban felhasznált eljárása.

A szennyeződés formája /gáz, aeroszol, por és durva diszperz/ egyben meghatározza a vizsgálati módszert is.

NÉHÁNY, A LEVEGŐSZENNYEZŐDÉS VIZSGÁLATÁRA ALKALMAZOTT MÓDSZER

A vizsgálatok egyik területe annak a gyakorlati problémának tisztázása, miként keletkezik a smog. A kisérletek során fotokémiai reakciókat és radioaktiv nyomjelzést kapcsoltak össze . A kisérleteket ^{14}C-nel jelzett szénhidrogénekkel /etilén, 1-bután/ végezték.

A légköri szennyeződések vándorlásának vizsgálatára jól alkalmazhatónak mutatkozik a ^{18}F, ^{24}Na, ^{38}Cl és ^{42}K izotóp. A levegőből vizbe elnyelődő és a vizből levegőbe vándorló szennyeződések mértékének meghatározására az előbb felsorolt izotópokkal laboratóriumi viszonyok között kitünő eredményeket értek el.

A környezetvédelem szempontjából feltétlen jelentős a porszürésre alkalmas berendezések ellenőrzése, amelyre a radioaktiv izotópokat tartalmazó atmoszféra általánosan alkalmazható.

A radioaktiv izotópok gyakorlati felhasználásának egyik praktikus módja az, amikor $^{90}Sr/^{90}Y$ sugárforrásból származó β-sugárzás elnyelését határozzák meg különböző szürőfelületekre lecsapott porszennyeződés mennyiségének mérésére.

E módszernek nagy előnye, hogy radioaktiv izotóp felhasználásának ellenére sem idézi elő a környezet szekunder radioaktiv szennyezettségét, és a papirszalagszürőre vitt, különböző szemcsenagyságu szennyeződések regisztrálásával jól alkalmazható módszer áll rendelkezésre.

A ^{35}S tartalmu radioaktiv nyomjelző laboratóriumi vizsgálatok során jól alkalmazható a kéndioxid levegőben való kémiai reakcióinak tanulmányozására, különféle feltételek között.

A nagyobb koncentrációju és nagy mennyiségü levegőszennyeződést kibocsátó emissziós források /pl. gyárkémények/ szennyező hatását legcélszerübb a jól aktiválható elemeket tartalmazó inaktiv nyomjelző technikával vizsgálni. Az első vizsgálatokban kitünő eredményeket értek el Sb_2O_3 felhasználásával, ugyanis a vegyület aránylag könnyen juttatható a füstgázba, és abban megfelelő homogén eloszlással kerül a környezetbe.

A füstgázszennyeződés vizsgálatára ujabban mind többen ajánlják nyomjelzésre az aranyat vagy az indiumoxidot . Az indiumoxid aeroszolnak nagy előnye, hogy ülepedése hasonló a füstgázokéhoz. A mintákat vizzel telt müanyagtálcákon könnyü összegyüjteni, majd aktiválni, és az indiumot kémiai elválasztás után γ-spektrometriásan mérni.

Az aluminiumtermeléssel együttjáró fluortartalmu füstgáz komoly problémát jelent. Alapvető követelmény a füstgázban lévő fluorvegyületek mennyiségének meghatározása. ^{24}NaF tartalmu radioaktiv nyomjelzővel a füstgázlerakódás jól követhető, és a minták aktivitása egyszerüen mérhető.

A szén és olaj kéntartalmából származó szennyeződés felderitésében jól alkalmazható a Pu/Be, Am/Be, illetve ^{252}Cf neutronforrás. Az $^{34}S/n, \gamma/^{35}S$ reakció folyamán a neutronbefogást követő prompt γ-sugárzást biztositó radioaktiv forrás előnye, hogy intenzitása egyenletes, és a szükséges berendezések egyszerüek, jól kezelhetők.

A LEVEGŐSZENNYEZŐDÉSEK FONTOSSÁGÁNAK MEGÍTÉLÉSE KONKRÉT IPARI SZENNYEZŐK PÉLDÁJÁN

Az egyik legkiterjedtebb és legveszélyesebb szennyező komponens a szén- és olajtüzelés következtében levegőbe jutó kéndioxidok csoportja. Az Egyesült Államokban 1967-ben nagyarányu vizsgálati program kezdődött, hogy stabil kénizotópok arányának $/^{32}S/^{34}S/$ meghatározásával megoldják a következő feladatokat:

- a levegőben található kénvegyületek jelzésével a kénvegyületet kibocsátó szennyező forrás /kémény/ azonositása;
- az SO_2-konverzió meghatározása;
- a kénszennyezők megoszlásának meghatározása a kén-izotóparány mérésével, városokban és környezetükben.

A kén stabilizotóp-aránya ugyanis függ a tüzelőanyag lelőhelyétől. Az arány változása tömegspektrométerrel jól mérhető .

Mesterséges nyomjelzőként jól alkalmazható a kén-hexafluorid, és segitségével a SO_2 átalakulása és diszperziója a füstoszlopban meghatározható.

A SF_6-nyomjelzés és a stabil izotóparány mérésének kombinálásával a kénoxidok égő rendszerekben végbemenő átalakulása jó eredménnyel követhető.

A levegőben felhalmozódó és különböző területeken leülepedő SO_2 vizsgálata a növényekre kifejtett hatás szempontjából is rendkivül fontos.

Sok adat áll rendelkezésünkre, amely a földfelszin különböző részein a zöld növényzet SO_2 hatására bekövetkezett károsodását mutatja be. Kellogg és munkatársai részletesen elemezték a kéntartalmu szennyező gázok keletkezésének és légkörbe jutásának körülményeit. Rámutattak arra, hogy a SO_4-tartalmu esővizben kb. 70 %-ban a felhő alatti kimosásból származik a kénszennyeződés, és csak 20 % körüli az, ami a felhők közül ered. Ez gyakorlati szempontból számunkra azért jelentős, mert éppen a hazai meteorológiai adottságok ismeretében az előzetes vizsgálatok szerint meghatározhatjuk a légköri szennyeződések utját és megjelenésük várható körzetét.

A müszaki fejlődéssel együtt járó másik rendkivül fontos szennyező vegyületcsoport a szénoxidok csoportja. Mind a CO-konverzió vizsgálatához, mind a CO_2 felhalmozódásának megállapitásához különféle vizsgálatokra volt szükség. A radioaktiv ^{14}C-nel végzett izotóphigitásos vizsgálatokat már emlitettük, de hangsulyozni szeretnénk, hogy széndioxidok további sorsának

meghatározásában, a légköri szennyeződések veszélyességének megitélésében ez az egyik legfontosabb radioaktiv elem.

Az utóbbi időben külön szennyező forrást jelentenek az izotópfelhasználó helyek, a nukleáris energiát hasznositó erőművek és reprocesszálók. Ezeknek a környezetében előforduló radioaktiv szennyeződés gyakorlatilag a legváltozatosabb izotópösszetételü radioaktiv elemek mérését teszi szükségessé. E mérések elvégzésének módszerbeli nehézsége nincs. A mérési módszerek megbizhatósága megfelelő kémiai dusitásokkal fokozható. A gáz halmazállapotu radioaktiv szennyezők mérése szempontjából nagyon fontos a ^{85}Kr mérésének és meghatározásának ismerete. Egyes esetekben a gáz alaku szennyeződések vizsgálatára aktiv jelző gázként még mindig ^{85}Kr-t használnak.

A TALAJ ÉS NÖVÉNY SZENNYEZŐDÉSÉNEK TEKINTHETŐ IDEGEN ANYAGOK VIZSGÁLATI PROBLÉMÁI

A FÖLDFELSZINRE LEÜLEPEDŐ TALAJSZENNYEZŐDÉST OKOZÓ, NEM MEZŐGAZDASÁGI MŰVELÉSSEL ÖSSZEFÜGGŐ SZENNYEZŐDÉSEK

A talaj-növény-ember láncolatában a nem mezőgazdasági szennyeződésnek minősülő elemek között megtalálhatók azok az ipari szennyezők, amelyeket a levegő szennyező anyagai között már emlitettünk. Vizsgálatukra alkalmas módszereket igy részletesebben nem szükséges tárgyalni, de feltétlenül utalni kell arra, hogy bizonyos esetekben éppen a szennyező anyagok hatására bekövetkező változások /pl. a növényi részek elszineződése/ hivják fel a figyelmet a szennyeződés vizsgálatának a fontosságára. Számolni kell azonban a talajfelszinre kiszóródott, ott megkötődött különböző elemek mennyiségi és koncentrációs viszonyainak megváltozásával. Ez bizonyos esetekben, pl. akkumulációnál, könnyitheti a mérést, de fokozhatja a helyi károsító hatást. Más esetekben a kihullás /fall-out/ körülményeitől függően /pl. nagyobb csapadék esetén/ olyan eloszlást eredményezhetnek a feltalajban, amely nehezitheti a mennyiségi összehasonlitást, a növekedés vagy változás mértékének meghatározását.

A radioaktiv kihullás méréséhez, az ipari nehézfémszennyezők nyomonkövetéséhez a talaj- és növénymintáknál - a levegőmintáktól eltérően - minden esetben kémiai elválasztási, dusitási eljárásokra van szükség. Bizonyos porszennyeződések /pl. cementmüvek környékén/ olyan massziv felületi szennyeződést eredményezhetnek, hogy a lecsapódás révén károsan befolyásolják a növényi vegetációt. Ezekben az esetekben nemcsak a szennyeződés mértéke, hanem pontos összetétele és megoszlásának változása is lényeges a várható károsodás meghatározása szempontjából. A vizsgálatokhoz kettős izotópjelzés és aktivációval kombinált inaktiv nyomjelzés vehető számitásba, amely a levélen keresztüli közvetlen felvétel mértékéről és a talajra jutó anyag mennyiségéről ad felvilágositást.

A KORSZERŰ MEZŐGAZDASÁGI TERMELÉST KISÉRŐ SZENNYEZŐDÉSEK FORRÁSAI ÉS FAJTÁI

Az Európa-Tanács tagállamai az 1970-es évet ugyan a természetvédelem évének nyilvánitották, és meghirdették a levegő, a viz és a talaj szennyeződése elleni védelmet, ennek ellenére feltétlen számolnunk kell a különböző talaj- és növényi szennyezők mind nagyobb mértékü előfordulásával, mivel a szennyeződés egyes forrásai nem szüntethetők meg /egyes országokban még a betiltott peszticidek sem nélkülözhetők/.

A mezőgazdaságban használt különféle peszticidek az alkalmazás helyétől távolabb is előidézhetnek bizonyos kontaminációt. E tekintetben különbséget kell tenni a gyomirtószerként alkalmazott vegyületek és a rovarirtószerek várható utólagos hatása és akkumulációja között.

A gyomirtószerek a talajt, felszini vizeket és az atmoszférát egyaránt szennyezhetik. E szennyezés szempontjából az eredeti molekula és bomlástermékei külön meghatározási és minősitési problémát jelent. Ha egy-egy területet a környezetszennyezettség szempontjából minősitünk, a növények felületére került növényvédőszerek felszivódását éppen ugy vizsgálnunk kell, mint a talajon bekövetkezett kontamináció és akkumuláció mértékét. Nagy segitséget jelentettek e tekintetben azok a laboratóriumi vizsgálatok, amelyekből megállapitható, hogy a hatásos, de kis koncentrációban és kis mennyiségben felhasználható vegyületek vándorlásának nyomonkövetésére az izotóptechnika különleges lehetőséget biztosit.

Tartós talajszennyeződést előidéző vegyületeknél nemcsak magának a vegyületnek a felületen való megoszlását, hanem a domborzati viszonyoktól függő helyi vagy távolabbi veszélyeztető hatását is külön értékelni kell. Példaként emlithető meg az a tény, hogy a dombos területeken a vizsgálatokat a lejtő alján és a domboldalon külön kell elvégezni. A domboldalon, a lejtő aljához viszonyitva, egy nagyságrenddel kisebb mértékü szennyeződés, peszticidmaradék volt kimutatható, azonos alkalmazási viszonyok mellett.

A MEZŐGAZDASÁGI EREDETŰ, KÜLÖNBÖZŐ FAJTÁJÚ ÉS FORMÁJÚ SZENNYEZŐDÉSEK VIZSGÁLATÁBAN ALKALMAZOTT IZOTÓPOS MÓDSZEREK

A mezőgazdaságban alkalmazott és szennyeződést előidéző vegyületek vizsgálatára számitásba vehető nukleáris módszerek megitélésénél egyaránt gondolni kell a rovarölő szerek kémiai összetételére és tulajdonságaira. Ennek megfelelően elsősorban a nagy molekulákba beépithető radioaktiv elemet tartalmazó un. jelzett vegyületek felhasználása mutatkozik a legcélszerübbnek.

A növény felületére vitt növényvédőszerek felszivódásának, lebomlásának mértéke nagymértékben függ a vegyület stabilitásától. Ezeknek a vizsgálatához a legáltalánosabban a ^{14}C-nel jelzett vegyületek vehetők figyelembe.

A lombozatra juttatott, ^{14}C-nel jelzett 2,4,5-T hatásának vizsgálata során megállapitották, hogy a 2,4,5-T abszorpcióját és transzlációját a kezelés ideje, a levegő hőmérséklete és a talaj nedvességtartalma egyaránt befolyásolja. Izotóptechnika nélkül ilyen pontosságu és információértékü vizsgálatokra nem lett volna mód.

Más vegyületek /kloroneb/ alkalmazásakor a ^{14}C-jelzés annak meghatározását tette lehetővé /gyapot, bab esetében/, hogy a bevitt növényvédőszer a növény melyik részében halmozódik fel. Ez utóbbi vizsgálatok azt is lehetővé tették, hogy meghatározzák, milyen százalékban marad változatlan a talajból kivonható növényvédőszer-maradék.

A ^{14}C-nel jelzett herbicidek /2,4-D/ felhasználásával lehetőség nyilt arra, hogy külön vizsgálják a növények gyökérzónáját és a kifejlett leveleket, ugyanakkor meghatározzák azt is, hogy miként vándorolnak ezen vegyület molekulái és metabolitjai a növényben. E vizsgálatok gyakorlatilag a gyomirtószer célszerü felhasználása szempontjából nélkülözhetetlenek, hiszen mindegyik szerrel kapcsolatban ismernünk kell a felvétel módját és a talajban visszamaradó vegyület várható mennyiségét. Mindezek a vizsgálatok a vegyületek lebomlásának, az utólag szennyezetten visszamaradó terület felhasználhatóságának szempontjából rendkivül fontosak.

A kombinált kezelés következményeként a talajban olyan mértékü szennyeződés maradhat vissza, amelynek következménye a következő vegetációnál is jelentkezik. Eltérő azonban az egyes növények által felvett növényvédőszer mennyisége is; erre jó példa a ^{14}C-nel jelzett DDT felhasználásával végzett vizsgálat. A ^{14}C-nel jelzett DDT-vel homoktalajt kezeltek, amelyet kisérleti célból vizsgáltak. Ezt követően buza-, árpa- és rozsmintákon mérték a felvett DDT mennyiségét, izotóptechnikával. Az eredmény szerint a rozshoz képest a buza 2,3-szoros, az árpa 4,1-szeres mennyiséget vett fel. A talajban visszamaradó DDT mennyiségét jelzett vegyületek felhasználásakor, egyszerü extrakciós eljárással kombinált számlálással határozhatják meg.

Az inszekticidektől és a permetezéstől várható környezetszennyeződés vizsgálatában jó eredménnyel kecsegtet a ^{32}P-ral és ^{35}S-nel jelzett inszekticidek alkalmazása. Ezekkel vizsgálni lehet az alkalmazott vegyszer levélfelszinen való eloszlását és hidrolizisét is.

AZ IZOTÓPOS VIZSGÁLATI MÓDSZEREK ÖSSZEHASONLÍTÁSA A NÖVÉNY- TALAJ VIZSGÁLATÁBAN SZÁMÍTÁSBA VEHETŐ EGYÉB MŐDSZEREKKEL

Az utóbbi időben előállitott, kis mennyiségben hatásos növényvédőszerek bevezetése után mindinkább nyilvánvalóvá vált, hogy meghatározásukra, lebomlásuk nyomonkövetésére a klasszikus kémiai módszerek nem adnak kellő pontosságu eredményt. Még nehezebbé vált annak megállapitása, hogy milyen kölcsönhatásban vannak bizonyos növényvédőszerek és a különféle talajtipusok.

A talajba juttatott herbicidek kis mennyiségben kifejtik hatásukat, ugyanakkor, bizonyos mértékben a kulturnövényekben is felszivódnak. A talajba juttatott herbicid további sorsáról, hogy ui. mennyisége miként csökkent: elillanás, talajabszorpció, kimosódás, vagy szükebb értelembe vett lebomlás utján, elsősorban a nukleáris technika szolgáltatott megfelelő eredményt.

Különféle formában alkalmazott növényvédőszerek hatásának vizsgálatánál egyértelmüen a jelzett vegyületek adták a legtöbb információt.

Nagyszámu irodalmi adat alapján megállapitható, hogy ma már szinte minden, növényvédőszerként számitásba vehető vegyület előállitható jelzett vegyületként is. Felhasználásukkal nyomonkövethetjük a különféle alkalmazási módok, felhasználási körülmények, időjárási viszonyok esetében várható kontamináció kiterjedését és mértékét.

A környezetben eloszló, növényekben felhalmozódó, talajban megkötött peszticidmaradékok mennyiségi meghatározásán tul a nukleáris technika speciális mérésekre is lehetőséget nyujt. Itt emlithető pl. a méhekre kifejtett veszélyeztető hatás vizsgálata. A virágzásban lévő növényi vegetációnál a permetezőszerek hatóanyaga komolyan veszélyeztetheti a méheket.

A MEZŐGAZDASÁGI EREDETŰ ÉLELMISZEREK /NÖVÉNYI ÉS ÁLLATI NYERSANYAGOK/ VÁRHATÓ SZENNYEZŐDÉSE ÉS VIZSGÁLATI MÓDSZEREI

A levegő, talaj, növény a környezetszennyeződés szempontjából feltétlen ellenőrzendő terület, s ez egyben azt is jelenti, hogy az adott helyen termelt élelmiszerek szennyezettségével is számolni kell. Figyelembe véve bizonyos biológiai diszkriminációs folyamatokat, az élelmiszereknél, a környezethez képest, előfordulhatnak eloszlási és akkumulációs különbségek.

Ezzel függ össze az, hogy bizonyos megelőző környezetvédelmi intézkedések megkövetelik, hogy nyomon kövessük a szennyeződést előidéző vegyületeket a talaj - növény - élelmiszer láncolaton. E láncolat egyes tényezőinek diszkriminálo hatását izotópos eljárással jól követhetjük.

A kémiai hatásu anyagok és a radioaktiv kontamináció szigorubb vizsgálatokat tesznek szükségessé. Ez természetszerüen a vizsgálati módszerek előkészitését és tökéletesitését is megköveteli.

A mezőgazdasági eredetü termékek vizsgálatában a vékonyréteg-kromatográfiás, gázkromatográfiás, spektrofotométeres módszerek mellett mindinkább előtérbe kerülnek a nukleáris technikán alapuló módszerek is. E módszerek között a jelzett vegyületek mérésén tulmenően az izotóphigitásos és aktivációs analizis egyaránt számitásba vehető.

A vizsgálati módszerek különféle élelmiszer-nyersanyagokra a vizsgálati és pontossági igény szerint összeállithatók.

IZOTÓPOK ALKALMAZÁSA A VÍZMINŐSÉG VÉDELMÉBEN

Az emberi környezetvédelem további fontos területe a természeti vizek minőségének és mennyiségének védelme. Ez a mezőgazdasági termelés és az ipar zavartalan müködése szempontjából egyránt fontos.

A vizminőség és vizmennyiség biztositásának feladatai és az ezzel szorosan összefüggő területek:

- a felszini és felszin alatti vizek védelme;
- a vizeket szennyező anyagok visszatartása;
- a szennyezett felszini és felszin alatti vizek használat előtti kezelése.

A vizminőség védelmében tehát a kutatás, kisérletezés, ellenőrzés, épitès és üzemeltetés során, igen széles körben nyilik mód az izotóptechnika alkalmazására. Az izotóptechnika alkalmazásával olyan vizsgálatok végezhetők, illetve olyan információk szerezhetők, amelyek más, hagyományos módszerrel nem biztosithatók, azonos szintü információk esetén pedig az izotóptechnika gazdaságosabb, mint a hagyományos vizsgálati módszerek.

A VÍZMINŐSÉGVÉDELEMNEK AZ IZOTÓPALKALMAZÁSSAL SZEMBEN TÁMASZTOTT IGÉNYEI

A vizminőségvédelem területén - a jövőben egyre nagyobb jelentőséggel - vizsgálnunk kell

- a vizszennyező anyagok egymásra gyakorolt hatását;
- a vizzel történő keveredés, elegyedés folyamatát;
- a vizben bekövetkező fizikai, kémiai, biológiai bomlási és átalakulási folyamatokat;
- a szennyező anyagoknak a vizzel kapcsolatba kerülő szerves és szervetlen anyagokba való beépülését, kötődését is;
- a különféle reakciók és átalakulási folyamatok fázisait, idejét és mértékét;
- a szennyezések visszatartásának, kinyerésének, lebontásának technológiai részparamétereit és teljes hatásmechanizmusát.

Az emlitett területeken az izotópos mérési vizsgálati módok a hagyományos módszerekhez viszonyitva számos esetben részletesebb, folyamatosabb és megbizhatóbb információt adnak. Ennek eredményeként intenzivebb és gazdaságosabb szennyviz- és viztisztitási technológiák kialakulása várható.

A nukleáris technika alkalmazásba vétele és a kisérleti atomrobbantások által előidézett radioaktiv szennyezettség környezeti megjelenése után, a nukleáris szennyeződések vizsgálatakor, kiderült, hogy egy sor mikroszennyező /elsősorban a nehézfémek és a toxikus anyagok/ olyan mennyiségben van

jelen a természetes vizekben, hogy a táplálékláncon keresztüli felhalmozódása szervezetünkben akkor is bekövetkezik, ha koncentrációjuk egyes esetekben közel azonos a sugárzó anyagok rendkivüli kis koncentrációjával.

A koncentráció értékelése mellett a vizügyi vizsgálatokban talán a legkritikusabb érték a feldusulás mértéke, amelyet jól kifejeznek a különféle radionuklidoknak pl. a különböző élő szervezetekben mért feldusulási faktorai. Ezek összefüggést teremtenek a vizben és biomasszában jelenlévő radioaktiv anyagmennyiség között. Kifejezik, hogy a vizhez képest milyen mértékben növekedett a sugárzó anyag mennyisége az egyes vizi élőszervezetekben. A radioaktiv anyagok viselkedésének törvényszerüsége az élővizekben rendkivül bonyolult, ezért megismerésük állandó megfigyelésre és igen pontos ellenőrzésre van szükség./Itt a nukleáris méréstechnika megbizhatósága rendkivül előnyös lehet./

A vizminőségvédelemben mind a természetes, mind a mesterséges, továbbá a stabil és a radioaktiv izotópok egyaránt számitásba vehetők. Az alkalmazás tulnyomó része természetesen a radioaktiv izotópok körébe tartozik.

A kémiai elemeknek - néhány kivételével - van nyomjelzésre alkalmas radioaktiv izotópjuk. A vizkutatásban, figyelembe véve a szennyezők sokaságát, elvileg minden radioaktiv izotópot lehet alkalmazni. A témában adott feladat megoldásához elsősorban a következő radioizotópok jöhetnek számitásba: ^{3}H, ^{14}C, ^{24}Na, ^{32}P, ^{35}S, ^{59}Fe, ^{82}Br, ^{131}I.

A JELZÉS MÓDJA

Az esetek egy részében - szervetlen vegyületeknél - a jelzett anyagok, a radioaktiv izotópok felhasználásra kész állapotban beszerezhetők. Oldott, szervetlen szennyezők nyomonkövetésére ez megfelel. Amennyiben vizben szuszpendált, lebegő szennyező anyagot akarunk jelezni, ugy a jelölésre módszert kell kidolgozni.

A lebegő szennyeződés jelölése kétféleképpen történhet. Adott felszini vizből kiszürjük a lebegő anyagot, és felületére valamilyen jól kötődő radioaktiv izotópot abszorbeáltatunk. A második lehetőség, hogy a lebegő anyagot laboratóriumi körülmények között állitjuk elő, pl. ugy, hogy a csapadékot alkotó molekula valamely atomja radioaktiv /hidroxidpelyhek, foszfátok/.

Növényi eredetü lebegő anyagokba pl. valamely növénnyel tápoldat utján ^{32}P-t épittethetünk be.

A biológiai szennyezők jelölésére kétféle lehetőség kinálkozik. Az egyik esetben az élő szervezetek tápoldatába radioaktiv anyagot viszünk. A radioaktiv anyag az inaktiv izotóphoz hasonlóan beépül az élő szervezetbe, s igy az sugárzóvá válik. Ezzel a módszerrel van lehetőség E.coli jelölésére ^{32}P-val.

Hasonlóan lehet pl. algát is jelölni. A baktériumok az alkalmazott radioaktiv anyag mennyiségétől függően, sugárhatás következtében, 1-20 %-ban elpusztulnak. A szürési folyamatok tanulmányozásánál ez nem okoz problémát.

A másik lehetőség, hogy az elölt baktériumok, virusok felületére adszorbeáltatunk radioaktiv anyagot.

NEUTRONAKTIVÁCIÓS ANALÍZIS ALKALMAZÁSA

A neutronaktivációs eljárás kétféle lehet:
- inaktiv nyomjelzés, utólagos aktiválással, és
- nyomelemek meghatározása aktivációs analizissel.

A radioindikáció alkalmazása egyes esetekben /pl. a szennyviztisztitó telepekről, üzemekből bejutó szennyviz keveredésének vizsgálata, nyomonkövetése, müködő partiszürésü kutak vizsgálata/ nehézségekbe ütközik. Ilyenkor alkalmazható az aktivációs analizis, melyet utólagos radioindikációnak tekinthetünk. A módszer érzékenysége a radioindikáció és a klasszikus módszerek érzékenysége közé esik. Mivel az aktiválás során nemcsak a bejutott elem aktiválódik, hanem a jelenlevő egyéb elemek is, e zavaró hatás kiküszöbölésére esetenként kémiai elválasztást is kell alkalmazni.

A mérésre előkészitett aktivált mintában a mikroszennyezőkről kvalitativ képet a γ-sugárzók energiaeloszlása nyujt, a kvantitativ viszonyokra pedig a sugárzás intenzitásából következtethetünk.

AZ IZOTÓPTECHNIKA SEGÍTSÉGÉVEL MEGOLDANDÓ VÍZMINŐSÉGVÉDELMI FELADATOK

A vizminőségvédelemben jelentkező, következő feladatok megoldásában az izotópalkalmazásra jelentős kutatási, vizsgálati, ellenőrzési részfeladatok hárulnak:
- vizszennyező anyagok vándorlásának vizsgálata felszini vizekben;
- vizszennyező anyagok vándorlásának vizsgálata felszin alatti vizekben;
- szennyviztisztitó technológiák és berendezések vizsgálata;
- viztisztitó technológiák és berendezések vizsgálata.

VÍZSZENNYEZŐ ANYAGOK VÁNDORLÁSÁNAK VIZSGÁLATA FELSZÍNI VIZEKBEN

Diszperziós és diffúziós vizsgálatok

Nagy töménységü szennyvizek felszini vizekbe történő bebocsátása esetén az elkeverődési ut, idő és az eloszlás más paramétereinek meghatározása /pl. Budapest nagy szennyező csatornáiból a Dunába kerülő vizszennyezések eloszlásának vizsgálata, az alsó Duna-szakaszon folyó vizkivétel szempontjából/.

Lebegő anyagok és iszapok vizsgálata

Lebegő szennyező anyagok kiülepedése és felsodrása a vizfolyások különféle vizrajzi, hidraulikai és egyéb fizikai viszonyai között /pl. élelmiszer-,

cellulóz-, és rostipari szennyvizek lebegő szennyezéseinek kiülepedése a befogadók különféle viszonyai között/.

Kiülepitett iszapok kémiai, biológiai állapotváltozása és a vizminőségre gyakorolt hatása.

Felszíni vizek fizikai, kémiai és biológiai vizsgálata

Felszini vizek szennyező anyagokkal való terhelhetősége.

Álló- és folyóvizek fotoszintézise.

Vizben oldott szennyezések és lebegő anyagok adszorpciós vizsgálata.

Az öntisztulásban résztvevő biológiai rendszerek aktivitását befolyásoló tényezők pl. felszini viztároló eutrof folyamatai; a tározók és tavak vizgyüjtő területét szennyező anyagok /természetes szennyezők, települések szennyezései, a mezőgazdaság kemizálásából eredő szennyezések/ nyomonkövetése; a Balaton és a Velencei-tó tápanyagforgalma.

VÍZSZENNYEZŐ ANYAGOK VÁNDORLÁSÁNAK VIZSGÁLATA FELSZÍN ALATTI VIZEKBEN

A felszín alatti vizek áramlásvizsgálatai

A vizszennyező anyagok kiszürési, visszatartási, beépülési vizsgálatai

A különféle talajok szürőképessége.

A szennyezések különféle talajokba történő beépülése.

A szennyező anyagok adszorpciója különféle talajokon.

A SZENNYVÍZTISZTÍTÓ TECHNOLÓGIÁK ÉS BERENDEZÉSEK VIZSGÁLATA

Hidraulikai folyamatok vizsgálata

Ülepitők, deritők, szürők vizsgálata

Biológiai és kémiai reaktorok vizsgálata

BIOLÓGIAI FOLYAMATOK VÍZMINŐSÉGRE GYAKOROLT HATÁSÁNAK VIZSGÁLATA

Vizben oldott szennyezések lebomlása

Lebegő anyagok és iszapok lebomlása

Kémiai folyamatok vízminőségre gyakorolt hatásának vizsgálatai

Fizikai folyamatok vízminőségre gyakorolt hatásának vizsgálatai

Mikroszennyezők visszatartásának vizsgálata a különböző szennyvíztisztítási folyamatokban /nehézfémsók, növényvédőszerek és egyéb toxikus anyagok/

VÍZTISZTÍTÓ TECHNOLÓGIÁK ÉS EGYÉB BERENDEZÉSEK VIZSGÁLATA

Iparigáz- és ivóvíztisztító berendezésekben lejátszódó fizikai, kémiai és biológiai folyamatok vízminőségre gyakorolt hatásának vizsgálata:

- ülepitők és deritők,
- lassu szürők, partiszürésü kutak,
- gyorsszürők vizsgálata,
- egyéb vizkezelő berendezések ellenőrzése.

ÖSSZEFOGLALÁS

A szerzők szükségesnek tartják végülis kifejezni azon meggyőződésüket, hogy a környezetvédelem kérdésében feltétlenül a pozitiv, optimista álláspontot képviselik, nevezetesen meg vannak győződve arról, hogy a tudomány és technika jelenlegi fejlődési szakaszában az emberiség közös erőfeszitéssel kedvező irányban tudja befolyásolni és megoldani a környezetében bekövetkező változásokat.

A cikkben foglalt és az egyéb rendelkezésre álló adatok alapján egyértelmüen megállapithatjuk, hogy a nukleáris technikának jelentős szerepe lehet a környezetvédelem kisérleti és gyakorlati problémáinak megoldásában.

IRODALOM

1. "Air Quality Criteria for Sulfur Oxides", National Air Pollution Control Administration Publication NO. AP-50, Washington, D.C., 1969, 178.o.
2. *S.S. Brat*, et al., Thermal Neutron Activation Analysis of Particulate Matter in Surface Air of the Chicago Metropolitan Area, Environ. Sci. Technol. 4 /1970/ 50
3. *B.Y. Cho, H.G. Evans, L.B. Anderson*, Radioisotope Methods of Sulfur Dioxide Measurements, Trans. Amer. Nucl. Soc. 11, /1968/ 55
4. *J.B. Dahl*, et al., Air Pollution Studies by Means of Inactive Indium Tracer and Activation Analysis, IAEA-SM-142a/16
5. *R. Dams*, Nondestructive Neutron Activation Analysis of Air Pollution Particulates, Anal. Chem., 42, /1970/ 861
6. *H. Döring*, Umweltschutz - Messgeräte zur Luft- und Wasserüberwachung, Beckmann Report, 1971 2 sz. 3-11.o.
7. *N.D. Dudley*, et al., Applications of Activation Analysis and Ge/Li/ Detection Techniques for the Determination of Stable Element in Marine Aerosols, "Modern Trends in Activation Analysis" Proc. Conf. Gaithersburg Maryland, October 1968, NBS Publication 312, 1 43 Washington Government Printing Office, 1969.
8. Enviromental Contamination by Radioactive Materials, IAEA, Vienna, 1969
9. *J.J. Gatay, N.I. Sax*, A Simplified Technique for Stack Dispersion Mapping with Tritium, Enviromental Research 2, /1968/ 72
10. *P. Goodman, T. Donahue*, Kryptonate-Based Instrumentation Development for Automobile Exhaust Pollutants, U.S. A.E.C. Report No. NYO-4069-1 /March 1970/.

11. *G.F. Haines, C.L. Hemeon,* Method for Tracing the Ground-Level Distribution of Stack Gas Emissions, J. Air Pollution Assoc. 7 /1958/ 262
12. *W.A. Haller,* Evaluation of Elemental Tracers and Neutron Activation Analysis in Atmospheric Precipitation Studies, BNWL Report No. 481, 82
13. *Y. Hashimoto, J.W. Winchester,* Selenium in the Atmosphere, Environ. Sci. Technol. 1, /1967/ 338
14. *Hirling J., Kelemen K.,* Szintetikus radioaktiv aeroszólok előállitása, analizise és alkalmazása nukleáris légszürők minősitésére. KGST Symp. Kolobrzeg 1972, 7/11.
15. *G.L. Hoffman,* et al., Vanadium, Copper and Aluminium in the Lower Atmosphere Between California and Hawaii, Environ. Sci. Technol. 3, /1969/ 207
16. *W.W. Kellogg,* et al., The Sulfur Cycle, Science 175, /1972/ 587
17. *B. Lundholm,* "Global Effects of Enviromental Pollution", Springer, New York, 1970, 195-201.o.
18. *Manowitz,* et al., The Atmospheric Diagnostics Program at Brookhaven National Laboratory: Second Status Report, Brookhaven National Laboratory Report No. BNL-50206 /T-553//November 1969/.
19. *Manowitz,* et al., Use of Isotoper Ratio Tracer and Sulfur Hexafluoride Simultaneously as a Dual-Tracer System for Sulfur Oxides in the Atmosphere, Paper for IAEA Symposium on the Use of Nuclear Techniques for the Measurement and Control of Enviromental Pollution, Salzburg, Austria, October 26-30, 197o.
20. *E.A. Martell, S.E. Poet,* Excess Atmospheric ^{210}Po: Pollutant or Natural Constituent?, Trans. Amer. Nucl. Soc. 12 /1969/ 484
21. Massachusetts Institute of Technology, Man's Impact on the Global Environment, M.I.T. Press, Cambridge, 1970, 1,2, 5,6, 7,2, 7,3 és 7,5. táblázat
22. Methods of Radiochemical Analysis, WHO, Geneva, 1966
23. *W.E. Mott,* Isotopic Techniques in the Study and Control of Environmental Pollution, IAEA-SM-142a/1
24. *S.W. Nicksic,* et al., Radiotracer Study of the Production of Formaldehyde in the Photo-Oxidation of Ethylene in the Atmosphere: Part I. J. Air Pollution Control Assoc. 14 /1964/ 158, Part II. 14 /1964/ 224
25. Operation and Control of Water Treatment Processes, WHO, Geneva, 1964
26. *K.K.S. Pillay,* et al., Neutron Activation Analysis of the Selenium Content of Fossil Fuels, Nucl. Appl. Technol. 7 /1969/ 478
27. *P. Urone,* Static Studies of Sulfur Dioxide Reactions in Air, Environ. Sci. Technol. 2, /1968/ 611
28. Vegyip. Izotópalk. Szle, 1970/7 6.o.
29. *P.E. Wilkniss, D.J. Bressan,* Use of Radionuclides to Evaluate the Transport of Pollutants from the Hydrosphere into the Atmosphere, IAEA-SM-142a/17

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/654-662

JAVASLAT A DUNA RADIOAKTIV SZENNYEZÉSÉNEK NEMZETKÖZI ELLENŐRZÉSÉRE A DUNA MENTI ORSZÁGOK ATOMENERGIAFEJLESZTÉSI TERVÉNEK FIGYELEMBEVÉTELÉVEL*

Kelemen L.*, Bártfai Szabó L.**, Mészner J.***

*Országos Vizügyi Hivatal, Budapest

**OVH Vizkészletgazdálkodási Központ, Budapest

***Vizgazdálkodási Tudományos Kutató Intézet, Budapest

/Érkezett 1973. október 15-én/

A távlati vízigény és az atomerőmű-építési programok ismeretében nemzetközi együttműködésre van szükség a Duna radioaktív szennyezettségének egységes ellenőrzésére, az adatok regionális központban történő feldolgozására és tárolására.

Предложение для осуществления международного контроля радиоактивной загрязненности Дуная, имея в виду планы развития ядерной энергетики придунайских стран.
Антони, Ф., Бартфаи Сабо,Л., Дороги, И., Эрдейски, Ж., Келемен, Л., Бартфаи Сабо, Л., Мэснер, Й.

Учитывая будущие потребности воды из Дуная и планы сооружения АЭС, предлагается международное сотрудничество в целях создания единой методики контроля радиоактивной загрязненности Дуная, а также создания регионального центра для обработки и хранения данных.

A Proposition for the International Control of Radioactive Contamination of the Danube, in Accordance with the Atomic Energy Development Programmes of Danube Countries
Kelemen, L., Bártfai Szabó, L., Mészner, J.

In view of future water demands and construction programmes of nuclear power stations a proposition is promoted to develop a standard international system for the control of radioactive contamination of the Danube and to organise a regional centre for data handling and storing.

A Duna menti államok összlakosságának kb. 55 %-a, mintegy 38-40 millió él a Dunamedence területén. Ez egyben azt is jelenti, hogy a Duna Közép-Európa fő vizbázisa /1-2. táblázat/.

Az energiafejlesztés prognosztikai vizsgálata szerint az ezredfordulóra a világ energiaellátásában az atomenergia több, mint 50 %-kal részesedik. Ez az arány a ma kevésbé iparosodott országokban még nagyobb, 70-80 %-os lesz.

Ezt támasztják alá a Duna menti országok távlati fejlesztési programjai,

---

*A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség "Radiológia és Környezetvédelem" Európai Tanulmányi Csoportjának ülésén /Budapest 1973. szeptember 3-7/ elhangzott előadás.

amelyek szerint a várható atomerőmü-kapacitás az alábbi lesz:

	1985-ig	2000-ig
NSzK	20 000 MWe	120 000 MWe
Ausztria	3 000 "	
CsSzSzK	3 640 "	20 000 "
MNK	3 760 "	24 000 "

Ezen atomerőmüvek jelentős részét a Duna völgyébe telepitik, tehát feltétlenül számolni kell azzal, hogy bizonyos mennyiségü radioaktiv szennyezés a Dunába jut.

1. táblázat

Jövőbeni becsült ivó- és iparivizigény

	Vizigény millió m^3-ben 1980	2000
NSZK	1890	3370
Ausztria	1330	2300
Csehszlovákia	2460	6580
Magyarország	4560	8120
Jugoszlávia	2490	4310
Bulgária	1650	2300
Románia	5650	10950
Szovjetunió	915	945

2. táblázat

Jövőbeni becsült öntözővizigény

	Vizigény m^3/s-ben 1980	2000
NSZK	-	-
Ausztria	26	91
Csehszlovákia	133	299
Magyarország	150	320
Jugoszlávia	90	342
Bulgária	493	747
Románia	81	2010
Szovjetunió	133	456

Ha figyelembe vesszük azt, hogy a Duna vizének összes β-aktivitása jelenleg átlagban 10 pCi/l, csucsban 35 pCi/l, /ez az érték általában az ivóvizre Magyarországon megengedett érték egyharmada, csucsban afölött van/, továbbá a jelenlegi atomerőmüvek fajlagos kibocsátott szennyezéseit /3. táblázat/, számolni kell azzal, hogy a radioaktiv szennyvizek jelentősen szennyezik majd a Dunát.

A Duna hazánk fő vizbázisa, minőségének megőrzéséhez jelentős érdekünk füződik. A Duna menti települések tulnyomó része már ma is közvetve /partiszürés és medergaléria révén/ vagy közvetlenül /felszini vizkivétellel/ a Dunából fedezi ivóvizigényét. A jövőben, a vezetékes vizellátás nagyarányu fejlődése és az ivóviz-normativák jelentős emelkedése miatt, a dunaviz ivóvizként való hasznositása a jelenleginek a többszörösére növekszik. Az ipari vizigény növekedése az ivóvizigénynél is nagyobbra becsülhető.

A magyar Vizügyi Szolgálat már közel 15 éve vizsgálja és ellenőrzi a magyarországi felszini vizek radioaktiv szennyezettségét /összes β-aktivitását, 4. táblázat/. Az eltelt idő alatt a radioaktiv szennyezettség, a légköri utánpótlás csökkenése következtében, jelentősen csökkent; ez világjelenség. Ugyanakkor azonban, a békés célu nukleáris ipar nagyarányu fejlődése következtében, elsősorban a nagy vizmennyiséget igénylő viz-vizes reaktorok épitése miatt, az élővizekbe jutó radioaktiv szennyezés veszélye megnőtt. Az atomenergetikai program előrehaladása a Duna völgyében részben már most problémát jelent, még inkább gondot fog okozni a jövőben, ezért a Duna vize minőségének fokozott ellenőrzésére minden dunai államban megfelelő intézkedéseket kell tenni. Már most gondolnunk kell arra, hogy Magyarország fő vizbázisát, a Dunát, megfelelően meg tudjuk védeni radioaktiv szennyező anyagokkal szemben.

Hazánk összes vizkészletének 96 %-a külföldről ered. Ezért a legszélesebb körü nemzetközi együttmüködésre van szükség annak érdekében, hogy közös vizfolyásainkon, de elsősorban a Dunán, eredményesen óvhassuk a viz minőségét. Nemzetközileg szervezett, az egész Duna-völgyre kiterjedő, radioaktiv szennyezettséget előrejelző és kölcsönösen tájékoztató rendszert kell létrehozni. Ezt az igényt csak megerősiteni látszik a Duna vizét használó települések, mezőgazdaság és ipar igénye. Ezek számára a katasztrófális, nagymértékü radioaktiv vizszennyezést feltétlenül előre kell jelezni /riasztás/. A vizminőség védelmének tehát azt kell elérnie, hogy normál állapotban a vizfolyások vizének radioaktiv szennyezettsége ne lépje tul az ivóvizben megengedhető értéket, extrém esetben pedig kellő pontossággal és időben tudja a szennyezettséget megállapitani, és a vizhasználókat riasztani. A problémát sulyosbitja az a tény, hogy a vizigény minden területen /ivóvizellátás, öntözés, ipari felhasználás/ állandóan növekszik, mégpedig elsősorban a vizminőség iránti nagyobb követelményeket támasztó területeken /5.-6. táblázat/.

3. táblázat

Az atomerőművek radioaktiv környezetszennyezése

Atomerőmű	Reaktor-tipus	levegőbe kibocsátott				vizbe kibocsátott			
		gáz		aeroszol		összes /H-3 nélkül/		H-3	
		ezer Ci	Ci/MW	Ci	Ci/MW	Ci	Ci/MW	Ci	Ci/MW
Magyarország									
Paksi terv	nyomott-vizes	334	380	100	0,112	1,272	0,0015	500-1100	1,1-1,2
NSZK									
Gundremmingen 240 MW	vizfor-raló	10-200	33-666					20-30	0,06-0,10
Obrigheim: 320 MW	nyomott-vizes	5-10	16-33	0,05-0,12	0,00017-0,0004	1-10	0,003-0,03	x	x
Lingen: ? MW									
USA	nyomott-vizes	0,01-1	x	0,001-0,03	x	1-30	x	500-5000	x
	vizfor-raló	200-1000	x	0,05-0,5	x	1-30	x	10-100	x

4. táblázat

A magyar felszini vizek fajlagos radioaktiv szennyezettsége

	összes β-aktivitás pCi/l					
	Duna	Rába	Dráva	Tisza	Sajó	Balaton
1966	9	29	14	15	34	9
1967	9	30	13	16	50	9
1968	3	44	13	14	40	7
1969	4	37	11	14	13	6
1970	9	23	15	15	23	15
1971	8	29	17	15	18	16

5. táblázat

Jövőbeni becsült dunavizigény Magyarországon

Év	millió m^3/év				
	ivóviz	ipariviz	öntözés	halászat	egyéb
1980	525	2990	740	415	92
2000	1066	10180	1718	727	156

6. táblázat

Öntözési dunavizigény Magyarországon

	1975	1985	2000
Duna menti vizigény:			
teljes öntözött terület /hektár/	100 000	200 000	400 000
- kertészet	20	20	20
- takarmány	80	80	80
összes vizigény /millió m^3/év/	200	800	1718
A Dunából a Tiszába átvezetett viz iránti igény			
teljes öntözött terület /hektár/	-	200 000	400 000
- kertészet		20	20
- rizs		20	20
- takarmány		60	60
összes vizigény /millió m^3/év/	-	400	800
vizhozam /m^3/s/	-	80	160

A vizminőségvédelem feladatai tehát a radioaktiv vizszennyezések elleni védekezés területén a következők:

1. a radioaktiv szennyvizek dezaktiválási technológiájának fejlesztése;
2. a radioaktiv szennyvizbebocsátás megbizható mérése, ellenőrzése;
3. A felszini és felszin alatti vizkincs radioaktiv szennyezettségének mérése, ellenőrzése;
4. a vizi flóra és fauna, az emberi táplálékok vizből származó közvetett kontaminációjának ellenőrzése;
5. tulszennyezés esetén a veszélyeztetett vizkivételi helyek riasztása.

A Duna nemcsak Magyarországnak, hanem csaknem egész Közép-Európának vizbeszerzési és szennyvizbefogadó bázisa /1. táblázat/. A jövőben azonban a Duna radionuklid szennyezettsége, a felső szakaszán lévő országok jelentős nukleáris ipari programja miatt /Német Szövetségi Köztársaság, Ausztria, Csehszlovákia atomerőművei és reproceszáló üzemei/ nőni fog, de e jelentős nukleáris ipari fejlesztés ellenére sem nőhet egy meghatározott, a települések, a mezőgazdaság és az ipar számára még elviselhető szennyezési értéken tul. Ehhez természetesen nemcsak Magyarországnak, hanem az összes dunai államnak igen jelentős érdeke füződik.

Javasoljuk, hogy egységesitsük a mintavételt és a radioaktiv szennyezettség meghatározását. Javaslatunk elsősorban gyakorlati célokat szolgál, de az eredmények természetesen tudományos kutatási célokra is megfelelők. A radioaktiv szennyezettség ellenőrzésének az a lényege, hogy a Dunában minden előforduló káros /kiugró/ radioaktiv vizszennyezést észlelni kell, és pontosan, szennyező komponensként meg kell határozni.

I.Normál körülmények között javaslatunk az alábbi:

1. *A mintavétel helye*
   - az alsó és felső országhatáron,
   - a közbenső szakaszon a hazai nagy szennyezőktől és vizhasználóktól függően, szükség szerint.
2. *A mintázandó közeg*
   a/ a dunaviz,
   - szürt viz,
   - lebegő anyag,

   b/ iszap,

   c/ hidrobiológiai szervezetek,
   - flóra,
   - fauna.

3. Az egyes meghatározott összetevők

A mérendő radionuklidok nagy száma miatt előzetes szakértői bizottsági javaslat alapján kellene korlátozni a mérések terjedelmét és gyakoriságát.

II. Rendkivüli körülmények esetén, amikor a megengedett koncentráció és időtartam bizonyos határokat tullép, riasztási tervet kell kidolgozni szakértői bizottság javaslata alapján.

III. Katasztrófaállapot esetén a riasztási terven tulmenően nemzetközi környezetvédelmi terv készitendő, különös tekintettel a dunai vizfelhasználók védelmére. Ennek kidolgozása szintén a fent emlitett szakértői csoport feladata lenne.

A vizsgálatok eredményeként nyomon követhető a dunavizben lévő különféle radionuklidok vándorlása, esetleg a Duna adott szakaszára radioaktiv anyagmérleg is készithető.

A Dunába vezetett különféle radioaktiv anyagok kibocsátási helyének, mennyiségének, higulásának és vándorlásának nyomonkövetése és megfelelő értékelése azonban csakis ugy képzelhető el, ha minden dunai állam vizsgálja saját Duna-szakaszát, mégpedig azonos fázisban, meghatározott időközökben és azonos vizsgálati módszerekkel. A vizsgálati eredményeket pedig célszerü volna regionális központban feldolgozni, értékelni, és minden dunai államnak rendelkezésére bocsájtani. Igy az adott nukleáris ipari fejlesztéssel járó radionuklid-szennyezés mértéke pontosan regisztrálható, és a további fejlesztéssel szemben támasztandó dezaktiválási követelmények biztonságosan meghatározhatók.

A Duna egészének - mint Közép-Európa fő vizbázisának - radionuklid-szennyezettségét ellenőrző nemzetközi hálózat megszervezését véleményünk szerint a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség /IAEA/ keretében vagy irányitása mellett, valamely, a dunai államokat összefogó nemzetközi szervezetben lenne célszerü megvalósitani.

IRODALOM

1. A paksi atomerőmü /1968 évi/ beruházási programja, 1968
2. Radioizotópok sugárzása elleni védelem, MSz.62-69.1969
3. Hazai atomerőmü-prognosztika és a hasadóanyag-mérleg néhány kérdése, ERŐTERV tanulmány, 1972
4. Disposal of Radioactive Wastes into Rivers, Lakes and Estuaries,IAEA Safety Series No 36.
5. *K. Aurand, M. Ruf, W. Schikarski, I. Schwibach,* Environmental Exposure by Radionuclides in Gaseous and Liquid Effluents from Nuclear Power Plants in the Federal Republic of Germany, Peaceful Uses of Atomic Energy, Proc.Int.Conf.,Geneva, UNO-IAEA, 1972, vol.11, 591.o.

6. *K. Hübel, H. Herrmann, M. Ruf,* Radioökologische Untersuchungen am Beispiel der Abwasserbeseitigung aus dem Kernkraftwerk Gundremmingen /Donau./, 1972, Wasser- und Abwasser-Forschung, 2
7. *J. Petr, M. Prokop,* Jelenlegi helyzet és perspektivák a radioaktiv hulladékok likvidálásának megoldására a CsSzSzK adottságai között, 1972
8. А.С. Белицкий, Е.Я. Орлова, Охрана подземных вод от радиоактивных загрязнений, М., 1969
9. *B. Hundt,* Könnyüviz-reaktoros atomerőmüvek fejlesztése, épitése, és üzeme az NSzK-ban, előadás, 1973
10. *E.Schomer,* Biztonság és környezetvédelem könnyüvizreaktoros atomerőmüveknél az NSzK-ban, előadás, 1973

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/663-673

MODERN RADIOAKTIV HULLADÉKKEZELŐ BERENDEZÉSEK CSEHSZLOVÁKIÁBAN, LENGYELORSZÁGBAN ÉS A SZOVJETUNIÓBAN

Pavlik O.
MTA Izotóp Intézete, Budapest

/Érkezett 1973. augusztus 30-án/

A řeži, a swierki, a moszkvai hulladékkezelő állomás, ill. a zagorszki dekontaminálló üzem berendezései és eljárásai.

Современные установки для переработки радиоактивных отходов в Чехословакии, в Польше и в СССР
Павлик, О.

Установки и процессы в ржежской, сверкской и московской станциях для переработки отходов, а также загорской станции для обезвреживания оборудований.

Up-to-Date Facilities for Radioactive Waste Disposal in Czechoslovakia, Poland and in the USSR
Pavlik, O.

Waste disposal facilities and methods, usod in Řež, Swierk and Moscow and in the decontamination station in Zagorsk.

BEVEZETÉS

A környezetvédelmi intézkedések egyik fontos területe az atomreaktorokból, izotópelőállitó és kutató laboratóriumokból kikerülő, egyre növekvő mennyiségü és aktivitásu radioaktiv hulladék kezelése és tárolása. A hulladékkezelés célja, hogy a hulladékok térfogatát a lehető legkisebbre csökkentsék, és olyan fizikai állapotba hozzák, amelyből a radioaktiv anyag nem juthat ki a környezetbe. Amennyiben hulladékkezelést nem alkalmaznak, a radioaktiv hulladékot a környezettől elkülönitve kell tárolni.

Az elektromos energiaigény kb. 10 évenként megkétszereződik, távlatilag az olaj és szén helyére más, elsősorban nukleáris fütőanyag lép. Az ásványi fütőanyagok felhasználása korlátlan mértékben már csak azért is ésszerütlen, mivel ezeket a szénhidrogénkészleteket a vegyipar területén is hasznositani lehet.

Mivel várhatóan 2000-re a nukleáris energiaellátás a világ energiaellátásában közel 50%-ra növekszik, már most nagy figyelmet forditanak az atomerőmüvek környezetet érintő előnyös és hátrányos hatásaira.

Az atomerőmünek a hagyományos hőerőmüvekkel szemben a legnagyobb előnye, hogy nem okoz por, hamu- és kéndioxid-szennyeződést, és nem növekednek a szállitási problémák.

A felhasználandó nukleáris fütőanyag veszélyessége miatt természetesen sok ellenőrző és korlátozó intézkedés szükséges a környezetvédelem szempontjából. Ezért az atomerőmüvek fejlesztése és üzemeltetése során minden esetben gondosan tanulmányozzák a környezetet, vizsgálják és korlátozzák az általuk létrehozott szennyező hatásokat.

Megállapitották, hogy az atomerőmüvekből a levegőbe kikerülő radioaktiv szennyeződés igen kevés, a környezetet érő radioaktivitás növekedését sok esetben nem is tudják észlelni. Az erőmüvekben keletkező szilárd, folyékony és légnemü radioaktiv hulladékot - a környezetszennyeződés elkerülése céljából - gyüjtik, kezelik, és a környezetre veszélyt nem jelentő módon helyezik el. A végleges tárolás előtt törekednek arra, hogy a hulladékanyagokat vizben oldhatatlan formába vigyék /cementbe vagy bitumenbe ágyazzák/. A tárolásra előkészitett hulladékanyagokat vizzáró agyagrétegekbe, kimerült sóbányákba vagy mélygeológiai formációkba helyezik el.

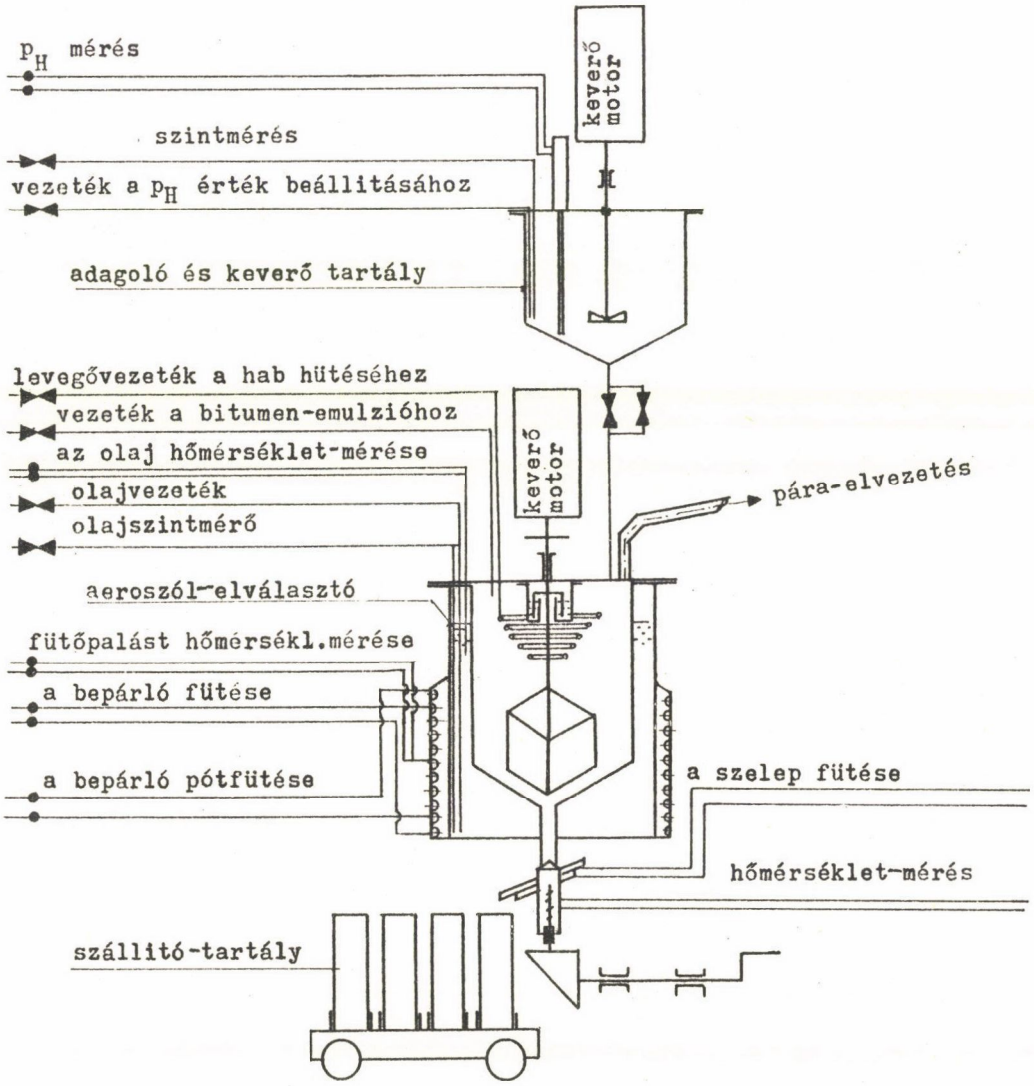
CSEHSZLOVÁKIA

A Csehszlovák Atomenergia-bizottság megbizásából feltérképezték az országot, hogy a távlati atomenergetikai program szempontjából melyek azok a területek, amelyek alkalmasak atomerőmüvek telepitésére. Tekintettel az ország sürü lakosságára és az ipari, illetve mezőgazdasági területek kiterjedségére, csak igen kevés és kis területet találtak erre alkalmasnak, azt is tulnyomóan a Szlovák Szocialista Köztársaságban.

A Řežben müködő hulladékkezelő állomás, mely a kutató atomreaktorok, az izotópelőállitás és izotópfelhasználás hulladékát dolgozza fel, már több mint 10 éve üzemel. A radioaktiv szennyvizet kémiai kezelés, ülepités után közvetlenül bepárolják. Ioncseréléssel a szennyvizeknek csak 2-3%-át dezaktiválják. A bepárlás után a koncentrátumot 200 l-es vashordókban cementálják. A keverést zárt rendszerü függőleges keverő végzi. A megszilárdult cementzagy keverék tetejét inaktiv bitumennel leöntik, a hordókat lezárják, majd az izotóptemetőbe szállitják.

A řeži kutatóintézetben kifejlesztés alatt áll egy uj bitumenezési eljárás, amelynél az eddigi gyakorlattal szemben alacsony lágyuláspontu bitument használnak. A módszer lényege, hogy a bitument adalékanyagokkal emulzióba viszik, majd a kapott emulziót melegen /120-140°C/ összekeverik a radioaktiv koncentrátummal. A forró olajfütésü keverőtartályban az emulzióból a

viz elpárolog, a visszamaradó bitumenes zagyot melegen hordókba engedik; kihülés és megszilárdulás után alkalmas az izotóptemetőben való végleges tárolásra /1. ábra/.



1. ábra
Emulziós bitumenező készülék /Řež/

A már jelenleg müködő félüzemi készülék kapacitása kb. 100 l/hónap. Az eljárást kis és közepes aktivitásu hulladékkoncentrátumok megszilárditására kivánják használni.

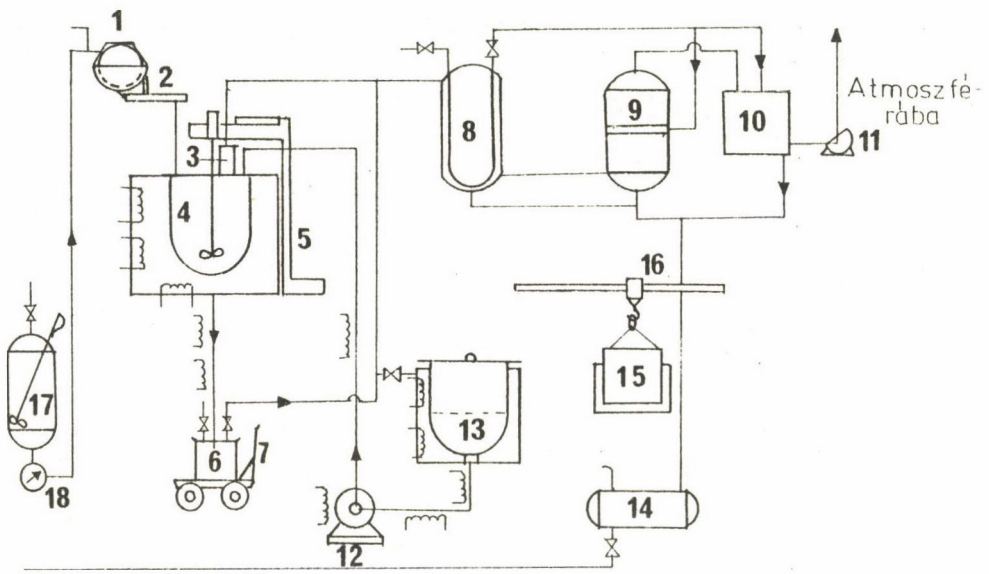
Kisérleteket folytatnak egy, a cementálást és a bitumenezést kombináló eljárással. Jelenleg 10 l-es mintákkal laboratóriumi kisérleteket végeznek.

LENGYELORSZÁG

A Swierkben müködő hulladékkezelő állomáson az izotóptermelő laboratóriumok és a kisérleti reaktor szennyvizeit gyüjtik és kezelik.

A hulladékfeldolgozó 1962 óta üzemel.

Az összegyüjtött szennyvizet, kémiai kezelése után, többszörösen ülepitik, és a keletkező zagyot cementbe épitik. Kb. 8 hónapja müködik egy modern kemény-bitumenizáló berendezésük /2. ábra/.



2. ábra

Kemény bitumenezési eljárás /Swierk/

1. Dobszürő
2. Szállitócsiga
3. Porlasztó
4. Keverőtartály
5. Keverő
6. Hordó
7. Szállitókocsi
8. Hütő
9. Mosó
10. Elektrosztatikus szürő
11. Ventillátor
12. Bitumenszivattyu
13. Előmelegitő
14. Gyüjtőtartály
15. Szállitókonténer
16. Daru
17. Zagykeverő
18. Zagyszivattyu

A berendezést Molból /Belgium/ vásárolták, és remélik, hogy az összes folyékony hulladékkoncentrátum szilárditását el tudják majd végezni vele. Jelenleg a bitumenizáló berendezésbe bevezetett zagy nagy /97-98 %/ viztartalma miatt a kapacitás kisebb a tervezettnél, ezért a viztartalom csökkentésére centrifugálszürő beépitését tervezik. A bitumenező elektromos fütésü, 200 mm H_2O depresszióval üzemel 240 ^oC hőmérsékleten. A folyékony bitumenzagy emulziót 200 l-es hordókba öntik, és az izotóptemetőbe szállitják.

SZOVJETUNIÓ

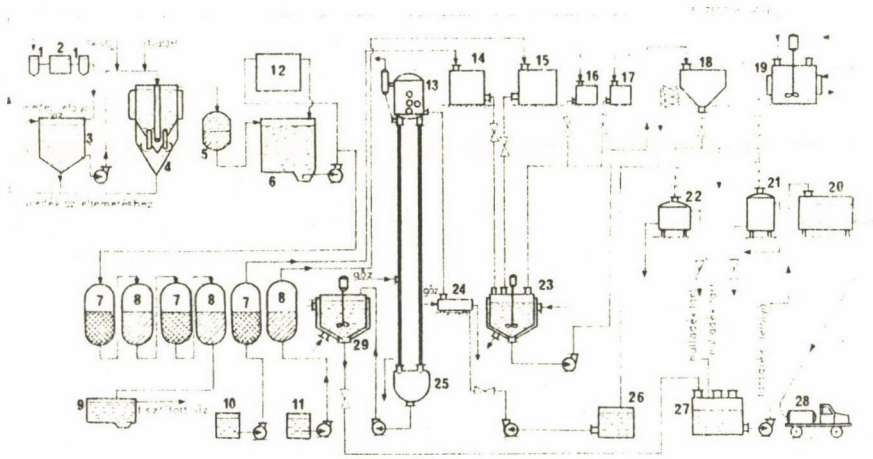
MOSZKVAI HULLADÉKKEZELŐ ÁLLOMÁS

Az állomás több moszkvai izotópfelhasználó intézet radioaktiv szennyvizét dolgozza fel. A szennyvizek kis fajlagos aktivitásuak. Kezelésük a 3. ábrán látható.

A szennyvizeket kémiai kezelés után ioncserélik, majd a keletkező lugos és savas regenerátumot bepárolják. A bepárlóból kikerülő koncentrált hulladékot, az ülepitők iszapjával együtt, az izotóptemetőbe szállitják. A kezelő rendszerben üzemszerüen müködik egy elektrodializátor /12/, amelyet az ioncserélők tehermentesitésére iktattak be. A szennyviz 0,7 g/m^3 sótartalmát 0,2 g/m^3-re csökkenti, ezáltal az ioncserélők kapacitása 3,5-szeresére növekszik.

A Levin-tipusu bepárló /13/ adatai:

Gőzteljesitmény, kg/m^2 óra	40-50
Az oldat végső forrpontja, ^oC	115
Besüritési arány	12:1
A maradék sótartalom, g/l	800-850
Dekontaminálási tényező	100



3. ábra

Radioaktiv hulladékkezelés /Moszkvai Hulladékkezelő Állomás/

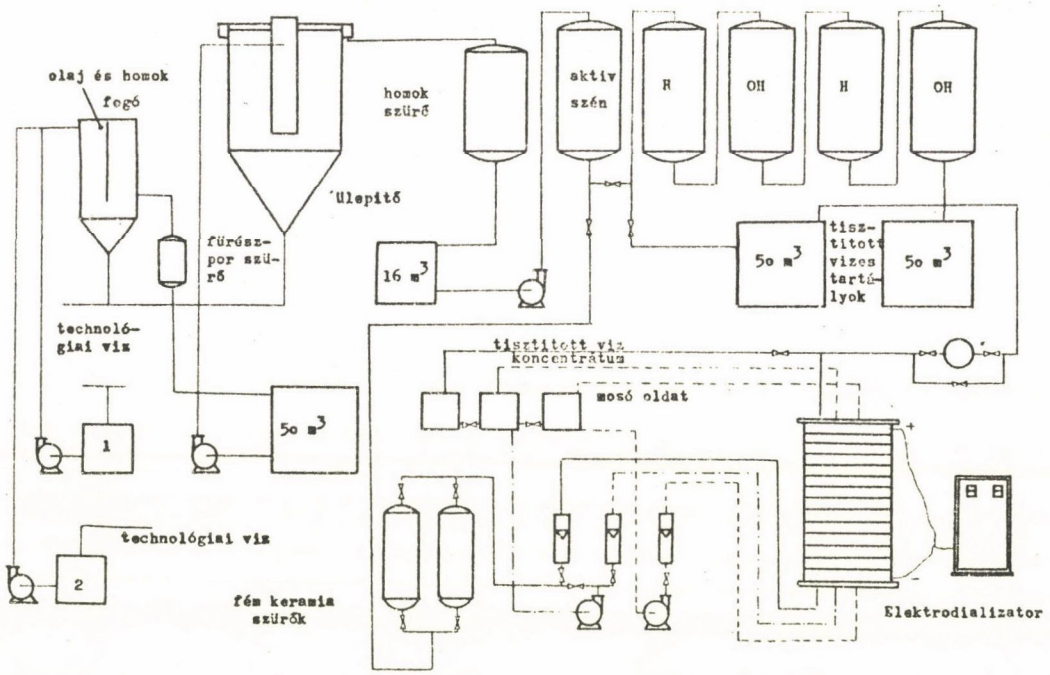
1. Előülepitő tartályok
2. Szellőztető
3. Kiegyenlitő tartály
4. Koaguláltató tartály
5. Gyors szürő
6. Közbenső tartály
7. Kationcserélő oszlopok
8. Anioncserélő oszlopok
9. Tartály a tisztitott viz részére
10. Sav a regeneráláshoz
11. Lugoló a regeneráláshoz
12. Elektrodializátor
13. Bepárló
14. A savas regenerátum gyüjtő-tartálya
15. A lugos regenerátum gyüjtő-tartálya
16. Szódaadagoló
17. Lugadagoló
18. Ülepitő
19. Zagytartály
20. A koncentrált folyékony hulladék adagolója
21. Szeparátor
22. Centrifuga
23. Semlegesitő reaktor
24. Hőcserélő
25. Kristályositó
26. Gyüjtőtartály
27. Gyüjtőtartály
28. Folyékony hulladékot szállitó kocsi
29. Ülepitő

ZAGORSZKI HULLADÉKFELDOLGOZÓ ÉS TÁROLÓ

Nagy só- és iszaptartalmú radioaktiv szennyvizek feldolgozása

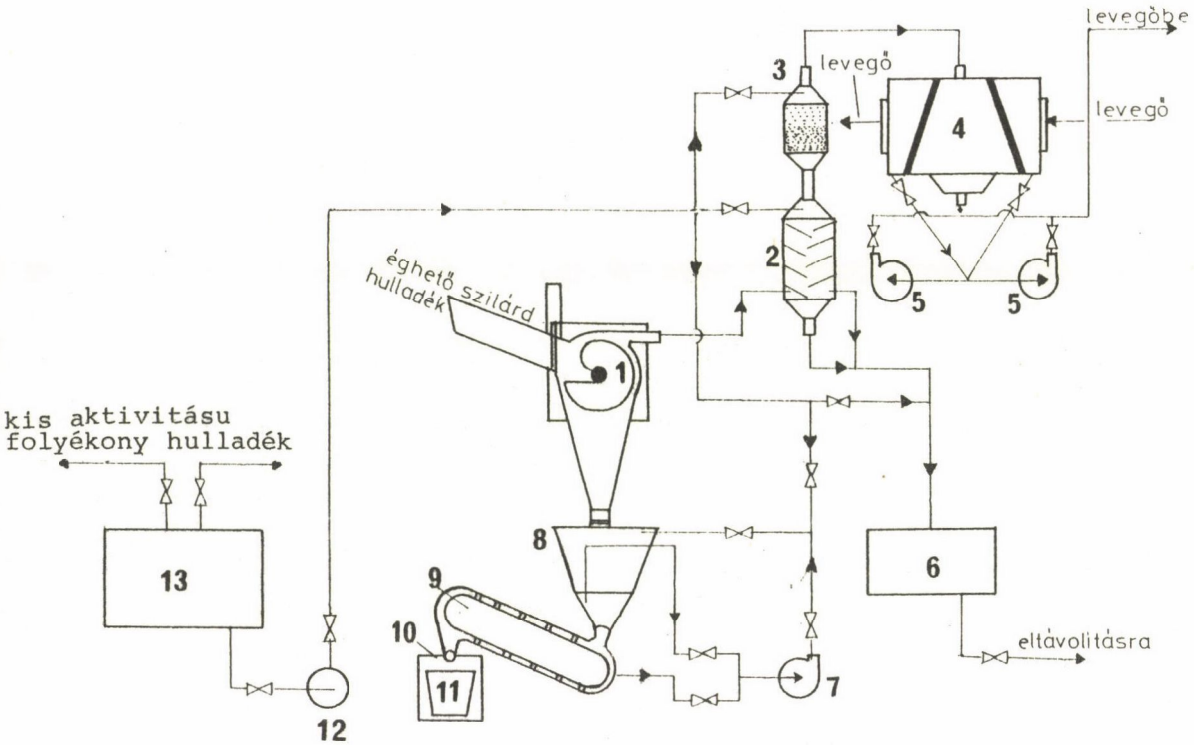
A kutatóreaktorok üzemeltetése, az izotópelőállitás és a hulladékkezelés folyamán a berendezések felülete elszennyeződhet. Ezeket a berendezéseket ujrafelhasználásuk, üzemeltetésük előtt dekontaminálni kell.

A hulladékkezelő állomáson 72 m^2 alapterületü különleges helyiség áll rendelkezésre nagyobb berendezések dekontaminálására. A tisztitás lehet mechanikus és vegyszeres. A keletkező nagy mennyiségü, illetve nagy só- és iszaptartalmu radioaktiv szennyviz tisztitására speciális, elektrodializátor alkalmazásával müködő dezaktiváló üzemrész szolgál /4. ábra/. A szennyvizet az 1 és 2 jelü gyüjtőaknákból olaj- és benzinfogóba vezetik, ahol leválasztják a szilárd szennyezőket is. A maradék szilárdanyagtartalom 300 mg/l. Az ülepitett szennyvizet fürészporszürőn keresztül vezetik egy koaguláltató-ülepitő rendszerbe. Ezután homokszürővel szürik, majd egy aktiv szén- és két fémkerámiaszürőn át az elektrodializátorba vezetik. A szennyvizet ezután lecserélik.



4. ábra

Nagy sótartalmu szennyvizkezelő rendszer /Zagorszk/



5. ábra

Hulladékégető berendezés /Zagorszk/

1. Elektromos kemence
2. Nedves porleválasztó
3. Kokszszürő
4. Üveggyapot-szürő
5. Ventillátorok
6. Zagygyüjtő tank
7. Zagyszivattyu
8. Hamueltávolitó
9. Szállitószalag
10. Hamugyüjtő
11. Konténer
12. A kis aktivitásu szennyvizet a nedves porleválasztóhoz szállitó szivattyu
13. Kis aktivitásu szennyviztartály

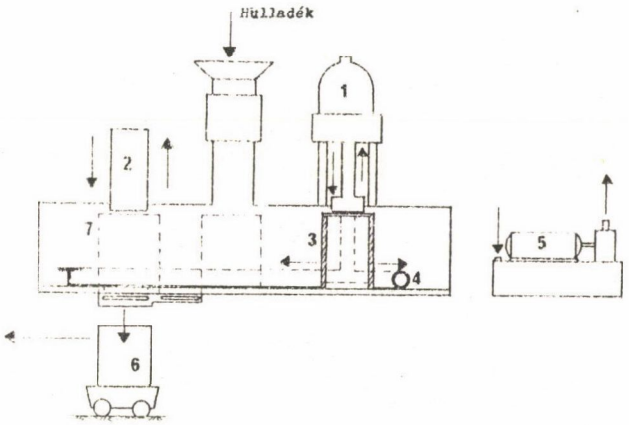
Égető berendezés /5. ábra/

Az égetőben biológiai hulladékot és éghető laboratóriumi hulladékot égetnek el. A maximálisan 30 kg sulyu hulladékcsomagokat a konvejor forgó kemencébe juttatja. A kemencéből kihulló hamu szállitószalagon konténerbe kerül. A füstgázokat többlépcsős gáztisztitás után vezetik ki a légkörbe.

Sajtoló berendezés

A laboratóriumi szilárd hulladék egy részét 200 t-ás függőleges hidraulikus sajtolóval tömöritik /6. ábra/.

A térfogatcsökkenés a hulladék minőségétől függően 2-10-szeres.



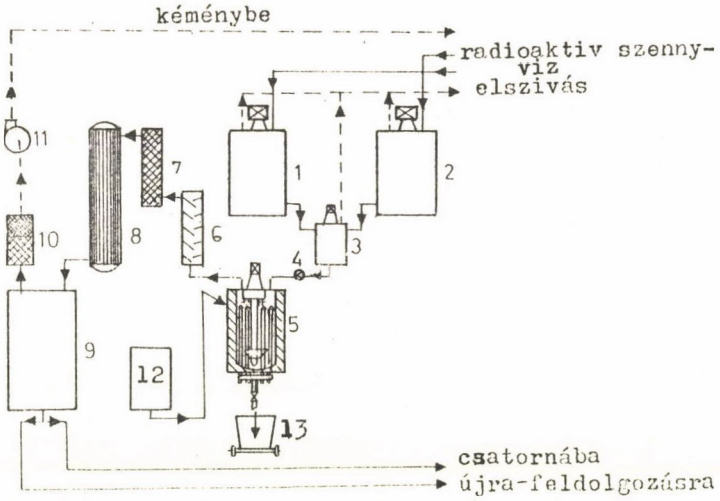
1. Sajtoló
2. Ledobó
3. Sajtolóasztal
4. Préssajtolóasztal-továbbító
5. Müködtető szivattyu
6. Konténer
7. Védőfülke

6. ábra

Hulladék sajtoló

Bitumenező berendezés /Zagorszk/

A bitumenező elektromos fütésü, 0,3 m^3/óra kapacitásu. A keletkező gázokat többlépcsős légszürőrendszer tisztitja. A bemenő szennyviz 5-600 g/l sótartalmu, 10^{-1} µCi/ml aktivitásu.



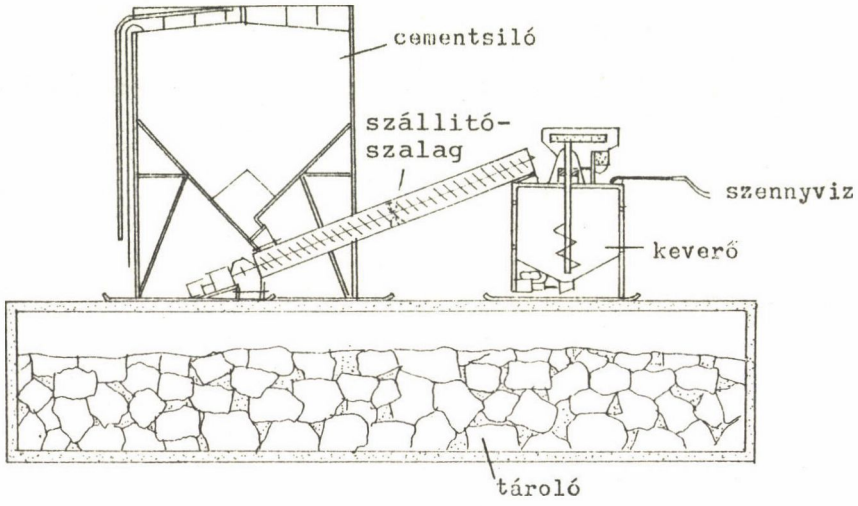
7. ábra

Bitumenező berendezés /Zagorszk/

1,2. Folyékony radioaktiv hulladék gyüjtőtartályai
3. Adagoló - semlegesitő
4. Adagoló szivattyu
5. Bitumenező reaktor
6. Cseppfogó
7. Rasching-gyürük
8. Hőcserélő
9. Szedő
10. Aktiv szén - üveggyapot szürők
11. Ventillátor
12. Bitumentartály
13. Szállitókocsi

Folyékony hulladék temetése, cementálás

A különböző hulladékkezelő állomásokról speciális tartálykocsikban ideszállitott radioaktiv szennyvizkoncentrátumot cementtel keverik, és a végleges tárolókba juttatják /8. ábra/.



8. ábra

Folyékony hulladék cementálása és temetése /Zagorszk/

A cementet a cementsilóból szállitószalagon betonkeverőbe juttatják, ahol összekeveredik a radioaktiv szennyvizzel. A müvelet a végleges tárolóhely felett történik, ahová a betont leengedik. Egy-egy tárolóhely megtelte után az aktiv betont bitumennel leöntik, és, a beton oldalfalakra betongerendákat fektetve, a tárolóhelyet lezárják.

A régebbi tárolóhelyek a föld felszine alatt helyezkedtek el, az ujakat a régiek tetejére épitették.

IRODALOM

1. Radioactive waste management, NRI, Řež, May 15-17, 1973
2. M. Golinski, Management of radioactive wastes in Poland, Swierk, 1973.
3. Waste management techniques and programmes in Chechoslovakia, Poland and in the Soviet Union, IAEA Vienna, 1971, STR/3

4. В.А.Соболев, Л.М.Хомчик, Н.А.Мухин, Н.В.Полухина,Переработка твердых радиоактивных отходов низкого уровня активности методами прессования и сжигания, III. Конференция СЭВ по переработке радиоактивных отходов, Колобжег, 1972, доклад №3/6
5. N.A. Rahov, Problem of decontamination of radioactive wastes from research establishments and nuclear power plants in the USSR, Moscow 1973.
6. Kulitchenko V.V., Solidification of liquid radioactive wastes and necessary conditions for their safe burial, Moscow, 1973.

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16 /1973/674-678

MIKROMENNYISÉGŰ ^{137}Cs MEGHATÁROZÁSA OLDATOKBÓL*

Nagy J.
Kossuth Lajos Tudományegyetem Izotóplaboratóriuma, Debrecen

/Érkezett 1973. január 12-én/

Módszer 3-6 pCi/l aktivitású ^{137}Cs meghatározására 7-nél kisebb pH-ju oldatokban /élővizekben/. A meghatározás időszükséglete /aktivitásmérés nélkül/ 15 perc.

Определение микроколичеств ^{137}Cs в растворах
Надь, Й.
Метод определения ^{137}Cs с активностью 3-6 pCi/л в растворах с pH меньше 7 /в природных водах/, в 15 минут /без измерения активности/.

Determination of Microquantities of ^{137}Cs in Liquids
Nagy, J.
Method for the determination of 3-6 pCi/l activity ^{137}Cs in liquids with pH lower than 7 /in natural waters/, in 15 minutes /without activity measurement/.

Jelen beszámolómban olyan kémiai módszer kidolgozását ismertetem, amelylyel mikromennyiségü ^{137}Cs-et lehet kimutatni az un. élővizekben, a szokásos bepárlási müveletek nélkül.

Az atomenergia-ipar fejlődésével a ^{137}Cs izotóp mind nagyobb jelentőségre tesz szert. Ez az izotóp ugyanis a ^{235}U atomerőmüvek reaktoraiban végbemenő maghasadásának olyan terméke, melynek igen nagy a hasadási hozama /6,%/ és meglehetősen hosszu a felezési ideje /30 év/. Emiatt manapság - már néhány éves tárolás után - a radioaktiv hulladékok aktivitását alapvetően a ^{137}Cs leányelemének, a $^{137}Ba^{m}$-nek γ-sugárzása határozza meg. Ugyancsak ennek köszönhető az un. élővizekben lévő radioaktiv szennyeződés γ-aktivitásának tulnyomó része.

Tekintettel arra, hogy a ^{137}Cs, mint kifejezetten a maghasadás következtében keletkezett mesterséges radioaktiv izotóp, csak mikromennyiségü szennyezőként lehet jelen az ember környezetében, ezért csak a mikromennyiségü cézium meghatározásának módszerével foglalkozom, annál is inkább, mert a felszini

*A KLTE Izotóplaboratóriuma és az Országos Vizügyi Hivatal között létrejött szerződés keretében végzett munka alapján.

vizekben /vagy másképpen élővizekben/ - mint pl. a Duna vizében is - régebbi vizsgálatok és előrejelzések szerint[1-3] egyre nagyobb radioaktiv szennyeződéssel kell számolni, a kiépülő atomerőműhálózat miatt. Igy feltétlenül szükségessé válik az élővizek további rendszeres ellenőrzése radioaktivitás szempontjából is. Ehhez azonban nemcsak az összaktivitást kell ismerni, hanem az egyes összetevők /igy pl. a ^{137}Cs/ aktivitását is. A rendszeres vizsgálat viszont könnyü, de pontos mérési módszereket követel meg.

A kálium-kobalt-ferrocianid $K_2CoFe/CN/_6$ /röviditve : KCFC/ komplex ioncserélőképességét már hosszabb ideje ismeri az irodalom[4-6]. Elsősorban nagyobb mennyiségü cézium kivonására alkalmazták, pl. radioaktiv laboratóriumok szennyvizének dekontaminálásánál, valamint hasadási anyagok feldolgozása során nyert aktiv hulladékok besüritésénél, illetve fixálásánál. A KCFC-ot természetszerüleg elsősorban ioncserélő oszlopok töltésére használták fel. Először A.L. Boni[6] alkalmazta kismennyiségü ^{137}Cs kimutatására pl. tejből, ioncserélő oszlop tölteteként.

Ezen előzmények után azt a feladatot tüztük magunk elé, hogy laboratóriumunkban már régebbi idők óta kidolgozott és használt adszorpciós módszert átalakitsuk az ioncserélő anyagokkal való vizsgálatok céljaira[7-9]. Az eddigi vizsgálatok során az adszorbeálandó anyagot oldatba vittük, és különféle kristályokat adva az oldathoz, azt keverve, vizsgáltuk az adszorpciót. Az igy előállitott heterogén fázisokban jól vizsgálható az adszorpció, illetve jelen esetben az ioncsere időtől és egyéb paramétertől való függése.

A KCFC előállitásához az alábbi módszert használtuk.
A vegyület a $K_4Fe/CN/_6 + Co/NO_3/_2 \longrightarrow K_2CoFe/CN/_6 + 2\ KNO_3$ reakcióegyenlet alapján, a két összetevőből közvetlenül keletkezik, lilásszürke csapadék alakjában. Ez közvetlenül nem használható fel, ugyanis nehezen szürhető, igen finom szemcsézettségü. Az irodalom adatai szerint a legtöbb szerző centrifugálással tömöriti a csapadékot[4-6]. Ezt a módszert nem tudtuk alkalmazni, mert a kobaltnyomok eltávolitása érdekében a csapadékot többször át kellett mosni vizzel. Ez homogén szuszpenzió többszöri képzését tette szükségessé, melyet a centrifugálással erősen összetömörödött csapadékkal nehezen tudtunk megvalósitani. Redős papirszürőket használtunk a csapadék leszüréséhez. Az igy kiszürt csapadék vizzel könnyen szuszpendálható. A müveletet többször megismételtük, mig a szürlet már nem mutatott kobaltnyomokat. Ekkor a csapadékot száritószekrényben 110°C-on, 12 órán keresztül száritottuk. A kapott csapadékot, amely erősen töredezett anyaghalmazként került ki a száritószekrényből, porcelán mozsárban elporitottuk, és szitasorozaton frakciókra szedtük.

KICSERÉLŐDÉSI FOLYAMATOK ^{137}Cs-TEL

A kisérletek első részében néhány tized µCi mennyiségü ^{137}Cs-tel végeztük a méréseket. Mindenekelőtt az ioncserélő mennyiségét kellett megállapitani.

Ezért az alábbi módszert alkalmaztuk.

100 ml-es főzőpohárba bemértük a KCFC granulátumot, majd 25 ml térfogatu, ismert radioaktiv koncentrációju oldatot hozzátéve, a heterogén rendszert kevertük. 15 perc után az oldatot a csapadéktól szüréssel választottuk el.. A szüréshez a Sartorius cég membránszürőit használtuk vákuum alkalmazásával. A szürletet 100 ml-es főzőpohárban fogtuk fel, és 0,5 ml 1 n HNO_3-val savanyitottuk, az üvegedény falán esetlegesen bekövetkező adszorpció csökkentése érdekében. A szürőlapot ugyancsak 100 ml-es főzőpohárba vittük a csapadékkal együtt, és 25 ml vizzel és 0,5 ml 1 n HNO_3-val felvettük. Igy az aktivitásokat azonos geometriával tudtuk mérni, mindkét szétválasztott fázisnál.

Minden esetben un. vakpróbát is végeztünk, a szürőberendezésen esetleg bekövetkező adszorpció ellenőrzésére. Ugyanugy jártunk el, mint a fentebb leirt esetben, de KCFC granulátumot nem adtunk a rendszerhez. Megállapitottuk, hogy pH=3-8 között maximálisan 1,5 % veszteség volt tapasztalható, vagyis a szürőrendszer adszorpcióját ilyen mértékben kell figyelembe venni a számitások során.

A későbbiek során a kisérleti körülményeket: éspedig a pH értékét, a keverés idejét és az inaktiv cézium koncentrációját változtattuk.

Azért, hogy a főzőpohárban lévő anyagok aktivitásának mérése során ne kelljen önabszorpcióval számolni, minden esetben a kibocsátott γ-sugárzást mértük. Az esetleg előforduló más radionuklidok γ-sugárzása zavaró hatásának kiküszöbölésére egycsatornás, Philips gyártmányu analizátort alkalmaztunk. A ^{137}Cs-nek, illetve leányelemének, a $^{137}Ba^{m}$-nek 661,6 keV energiáju γ-sugárzását mértük az analizátor differenciáldiszkriminátor állásában. Az optimális mérési körülményt, a háttér és érzékenység arányának megfelelően, 8 voltos csatornaszélesség beállitásával értük el. Ez egyébként a felhasznált készülékösszeállitás esetén az emlitett energiáju γ-sugárzás spektrumvonalának szélességével volt egyenlő.

Az érzékenység fokozására 127 mm átmérőjü NaI/Tl/ kristályt /SCINTIBLOCK 127 SEP 127 - Quartz-Silice/ használtunk, melyben 80 mm átmérőjü félgömb alaku lyuk volt. Ebbe helyeztük a főzőpoharat a mérendő anyaggal. Teljesen "belemerültek" a kristályba, igy a mérés hatásfoka jó volt. Az aránylag kis hátteret részben azzal sikerült elérni, hogy a mérőfejet 120 mm falvastagságu öntöttvas gyürükből álló védő /árnyékoló/ toronyba helyeztük.

A végső mérési eredményeket minden esetben többszöri mérések átlagértékeként kaptuk. Az átlagolást és háttérlevonásokat az Egyetem Számitó Központjának elektronikus számitógépével végeztük el, a mérőberendezés által lyukszalagra vett értékek alapján.

Az időtől való függés meghatározása érdekében 20-20 mg KCFC-ot mértünk

a főzőpoharakba. Az aktiv oldat pH-ja 3 volt. A keverési időt 1 perctől 60 percig változtattuk a kisérletek során. A kicserélődés mértéke minden esetben 99,5 % felett volt. Igy tehát az időtől való függést a kicserélődési mechanizmusban megállapitani nem sikerült.

A KCFC IONCSERÉLŐ KÉPESSÉGÉNEK MEGHATÁROZÁSA

Mint az előző részből látható, 20 mg KCFC az oldatba vitt ^{137}Cs mennyiségét gyakorlatilag teljesen kicseréli, tehát további kisérletek látszottak szükségesnek. A vizsgálatokat növekvő inaktiv céziumkoncentrációkkal végeztük.

Ezekből a kisérletekből megállapitható, hogy az általunk használt KCFC grammja 4 mg iont /Cs/ képes megkötni, illetve kicserélni. Hogy ez valóban megkötést jelent, azt az alábbi kisérletsorozattal bizonyitottuk. Az ismert aktivitásu KCFC-ból 20-20 mg-ot inaktiv 25 ml vizzel /pH=3/ 1-60 percig kevertünk, és szétválasztás /szürés/ után az előzőekhez hasonlóan mértünk. Az oldat maximálisan 0,3 % aktivitást mutatott a szilárd anyaghoz képest. Igy tehát visszaoldódásról a fenti körülmények között nem beszélhetünk.

A továbbiak során a zavaró ionokat vizsgáltuk. Miután a feltételezett élővizekben K, Ca, Mg só lehet, megvizsgáltuk hatásukat. Egyöntetüen megállapitható, hogy a kicserélődést ezek nem zavarják. Pl. 0,1 g KCl a 25 ml oldat esetében (ez 4,0 g/l_{viz} értéket jelent), még nem befolyásolja a kicserélődést.

A szelektivitás fontosságát jól példázza a mérések során tapasztalt következő jelenség. A szétválasztott fázisok /leszürt oldat - kristály/ aktivitásának mérését közvetlenül a kisérletek után kezdtük meg, többszöri 1 perces méréssel. A leszürt oldat - a kicserélődés ellenére - kezdetben aktiv volt, majd aktivitása fokozatosan csökkent. Hosszabb időn keresztül folytatva a mérést, az aktivitás csökkenésének felezési idejére 145-150 s-ot kaptunk. Ez a $^{137}Ba^{m}$ leányelem felezési idejét közeliti meg /az irodalmi felezési idő 156 sec[10]/. Ennek alapján megállapitható, hogy a KCFC a Ba ionokat - mint az várható is volt - nem cseréli ki az oldatból. Ezért a továbbiakban az aktivitásméréseket legalább 30 perces várakozási idő után kezdtük meg.

A pH-tól való függés meghatározására is végeztünk kisérleteket. Minden esetben 20 mg KCFC-ot kevertünk 25 ml oldattal 15 percig, csak az oldat pH-ját változtattuk. pH=7-ig egyáltalában nincs változás a kicserélődés mértékében, pH=8-nál kb. 8-9 %-ot visszaszorul a kicserélődés, de a párhuzamos mérések során is tapasztalható bizonyos foku szórás, tehát bizonytalanság.A pH=7 tartomány alatti értékek esetén zavaró hatás tehát nem tapasztalható, illetve nem kell vele számolni.

NAGY HIGITÁSU ÉS NAGY TÉRFOGATU OLDATOKKAL VÉGZETT VIZSGÁLATOK

A KCFC ioncserélő képességének és körülményeinek vizsgálata után lénye-

gesen nagyobb térfogatokra tértünk át.

A ^{137}Cs oldatból 60 pCi/ml radioaktiv koncentrációju törzsoldatot készitettünk. Ezt 4 π-gázáramlásos proporcionális számláló berendezéssel hitelesitettük. Igy olyan oldatot kaptunk, amelyek abszolut aktivitása 60 pCi/ml ± 2 % volt.

Ebből az oldatból közönséges csapvizhez literenként 0,1 ml-t adtunk. 3 liter oldatot vettünk egy-egy kisérlethez. Az oldathoz minden esetben 0,5 g KCFC-ot adtunk, és a pH-t HNO_3-val 3-ra állitottuk be. 15 perces keverés után az oldatot leszürtük, majd a szokásos 30 perc eltelte után mértük.

Amint várható is volt, a csapadék aktivitása minden esetben a bevitt ^{137}Cs mennyiségével volt egyenlő, azaz a kicserélődés gyakorlatilag 100 %-os /1-2 %-os eltéréssel, ami természetesen a nagyon kis aktivitások miatt tapasztalható/. Megfelelő hosszuságu méréssorozatokkal ez a pontosság természetesen növelhető volt.

A továbbiak során ugyanezt az aktivitást 6 liter vizhez adtuk, vagyis az aktivitás 3 pCi/liter volt. Eltérést a mérési eredményekben itt sem tapasztaltunk.

Ezek alapján megállapitható, hogy 3-6 pCi/l koncentrációju ^{137}Cs biztonságosan meghatározható néhány %-os, az aktivitások mérési idejétől függő hibával.

KÖVETKEZTETÉSEK

3-6 pCi/l ^{137}Cs aktivitás 7-nél kisebb pH-ju oldatokból 0,5 g KCFC hozzáadásával biztonságosan meghatározható anélkül, hogy az oldatokat előzőleg fáradságos és időtrabló, sőt veszteséges eljárásokkal bepárolnánk. Másik nagy előnye a fenti módszernek, hogy egy-egy minta meghatározásának időtartama az aktivitások mérése nélkül 15 perc. A mérés ideje természetesen a megkövetelt pontosság függvénye.

IRODALOM

1. *A.Frantz*, Wasser und Abwasser, Wien 1968, 122
2. *A.Frantz*, Limnologie der Donau, Stuttgart 1966, 94
3. *A.Frantz*, Donauforschung, Stuttgart 1967, 340
4. *W.E.Prout, E.R.Russel, H.J.Groh*, J.Inorg.Nucl.Chem. 27 /1965/ 473
5. *V.Kourim, J.Rais, B.Million*, J.Inorg.Chem. 26 /1964/ 1111
6. *A.L.Boni*, Anal.Chem. 38 /1966/ 89
7. *L.Imre, J.Nagy*, Kolloid Z. 135 /1954/ Heft 3. 161.
8. *L.Imre, J.Nagy*, Kolloid Z. 183 /1962/ Heft 1. 134.
9. *L.Imre, J.Nagy*, Acta Phys. Chim.Debr. 10 /1965/ 5
10. *W.Kunz, J.Schintlmeister*, Tabelle der Atomkerne, Akademie Verl. Berlin Teil I. Band 2. 554

IZOTÓPTECHNIKA /Budapest/ 16/1973/ 679-683

SZÁMITÓGÉP ALKALMAZÁSA SZEMÉLYI FILMDOZIMÉTEREK KIÉRTÉKELÉSÉRE*

Bojtor I.*, Illés Á.**

*Országos "FrédéricJoliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet, Budapest

**Magyar Hiradástechnikai Egyesülés Számitástechnikai és Szervezési Központja, Budapest

/Érkezett 1973. december 1-én/

Az RPS/AERE személyi doziméterek kiértékelése számitógéppel. Az expoziciós dózis meghatározásának hibája nem haladja meg a ±20%-ot.

Оценка пленечных индивидуальных дозиметров с помощью ЭВМ
Бойтор, И., Иллеш, А.

Оценка ЭВМ RPS/AERE дозиметров. Ошибка определения доз облучения не превышает ±20%.

Evaluation of Personal Film Dosimeters by Computer
Bojtor, I., Illés, Á.

Evaluation of RPS/AERE dosimeters by computer with a 20% maximum error in exposition dose determination.

BEVEZETÉS

A Heard, Jones és Marshall által kidolgozott RPS/AERE személyi filmdoziméter egyike a legalkalmasabb módszereknek a kevert energiáju és különféle tipusu sugárzásoktól kapott foglalkozási sugárexpozició mérésére, illetve dózis becslésére[1-4]. Napjainkban indokolt az a követelmény, hogy a kevert sugárzás egyes energiakomponenseit a biológiai következményekre való tekintettel megállapithassuk[5-7]. Ez különösen akkor lényeges, amikor a személyek sugárexpoziciója a megengedett maximális szint felett van.

---

*A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség "Radiológia és környezetvédelem" Európai Tanulmányi Csoportjának ülésén /Budapest, 1973. szeptember 3-7/ elhangzott előadás.

Az RPS/AERE rendszer kiértékelési eljárása nem tünik egyszerünek a rutin munka gyakorlati oldaláról nézve, de ± 20 %-os, vagy, a sugárzás energiaösszetételétől függően, még kisebb hibával lehet vele a személyi expoziciót - illetőleg a test bizonyos helyén a dózist - meghatározni.

A 20 keV - 2 MeV intervallumba eső röntgen- illetve γ-sugárzás esetén négy kiértékelő módszert lehet alkalmazni, ugy, hogy mindig ki kell választani a megfelelőt a spektrum egyes részeihez. A kevert energiáju fotondózis empirikus formulával is kiszámitható, ez ± 20 %-nál pontosabban történhet, ha a komponensek tulnyomóan 40 keV alatt vannak. A megfelelő kiértékelési módszert előirt kiválasztási szabályok alapján alkalmazzuk a különböző energiatartományokban. Ezeket a szabályokat számértékek formájában a különböző szürők alatti látszólagos dózisviszonyok és a sugárzás energiája közötti összefüggésből kell kiszámitani.

Az Intézetben müködő egyéni dozimetriai szolgálat néhány éve bevezette az RPS/AERE rendszert. Speciális előhivás alkalmazása révén megnöveltük az összetett Kodak emulzió méréstartományát. Az előhivást standard feltételek mellett automatizáltuk, és ennek következtében a havi kalibrációs filmsorozatok feketedésértékei ± 3 % standard eltéréssel jól reprodukálhatók.

A kiértékelési módszer összetett jellege miatt már Heard és Jones javasolta számitógép használatát. Ezáltal a numerikus számitások és a feketedéseknek a kalibrációs görbéről való visszaolvasása pontosabban végezhető el. A számitógépes kiértékelési rendszer előnye jól kitünik a magyar személyi fimdozimetriai szolgálatnál, mivel mintegy 9000 személyt tart ellenőrzés alatt, és a filmek jelentős részét numerikusan is ki kell értékelni. Sem a vizuális válogatás, sem a kiértékelési módszer egyszerüsitett változata nem alkalmazható a legtöbb esetben, mivel a szürők alatti kép általában kevert energiáju sugárzásra utal, amelynek komponensei különfélék és ismeretlenek. Ez főleg olyan filmeken figyelhető meg, amelyeket orvosi izotóplaboratóriumban vagy ipari üzemekben dolgozó személyek viselnek, itt ugyanis mind radionuklidokat, mind röntgensugárzást széles körben használnak. Arra is rá kell mutatnunk, hogy az ilyen helyen dolgozó személyek jelentős része sok esetben akkora dózist kap, amely nem hanyagolható el a megengedett maximális szinthez képest.

PROGRAMOZÁS

Számitógépprogramot dolgoztunk ki a leirt kiértékelési rendszerre, amelylyel a személyi dózis könnyen, a megfelelő módszerrel, kielégitő pontossággal kiszámitható. A program két fő részből áll.

Az első részben, amelyet Fortran nyelven irtunk, a film dózis-feketedés kalibrációs görbéjéhez polinomot illesztettünk abból a célból, hogy a szürők alatti feketedéshez látszólagos dózist rendeljünk. Ugy találtuk, hogy a gör-

be polinommal való leirásával pontosabb eredményt kapunk a leolvasásnál, mintha interpolációt használnánk, és ez azért fontos, mert a kiértékelés valamennyi müvelete a látszólagos dózisokból és arányokból indul ki.

A kalibrációs görbe közelitésére a többszörös regresszió módszerét használtuk[8]. Ismert, hogy ezzel az eljárással az Y = f/x/ függvény az x független változók lineáris kombinációjaként közelithető; ez általános alakban igy irható:

$$y = a_o + a_1x_1 + a_2x_2 + \ldots + a_nx_n \quad , \qquad /1/$$

ahol y a Y változó közelitése, $a_o,\ldots, a_n$ pedig a regressziós együtthatók. Ha a közelitendő függvény alakja bonyolultabb, a polinomos regresszió a független változók megfelelő transzformálásával végezhető el.

Esetünkben a Y = f/x/ függvény szerepét az S = f/D/ görbe játssza, ahol S a feketedés, D a dózis. Ha az /1/ polinomban $x_1 = \sqrt{x}$, $x_2 = x$, $x_3 = x^2$, $x_4 = x^3$, $x_5 = e^{-x}$, $x_6 = e^{-2x}$, akkor a következő egyenletet találtuk megfelelőnek a kalibrációs görbe közelitésére:

$$\ln y = a_o + a_1\sqrt{x} + a_2x + a_3x^2 + a_4x^3 + a_5e^{-x} + a_6e^{-2x}, \qquad /2/$$

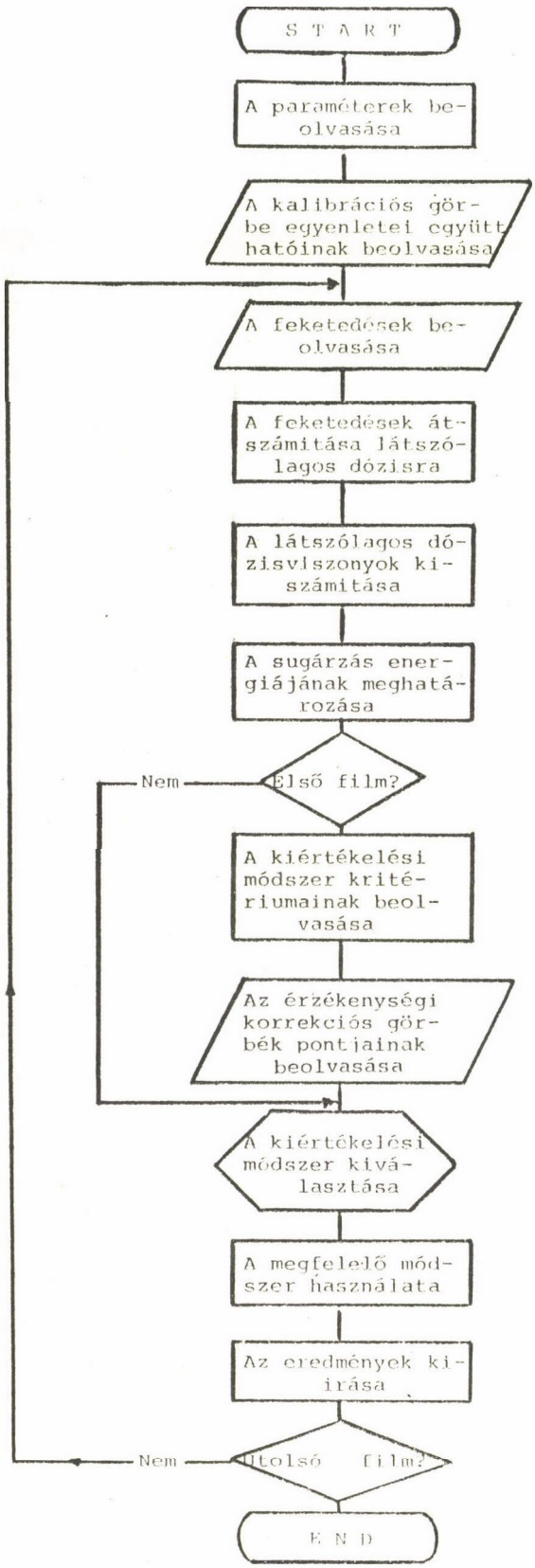
ahol Y D-nek és x S-nek felel meg.

Bemenő adatként S és D 15 értékét adtuk meg. Kiszámitottuk a /2/ regressziós egyenletet kielégitő együtthatók megfelelő értékeit. Az együtthatókra előirt szignifikanciaszintnek megfelelően szerepeltek az egyes változók az egyenletben. Mivel az együtthatók n-1 szabadsági foku Student-eloszlást követnek, elvégeztük a Student-féle t-tesztet, hogy megállapitsuk a független változók szignifikanciáját. 0,001 szignifikanciaszintet választottunk, amely 15-1=14 szabadsági foknál 4,14-et ir elő a t_p kritikus értékre. A t-teszt 10 regresszióból kapott T értéke 4,16 és 8,05 közé esett.

A /2/ regressziós egyenlet helyességét az r többszörös korrelációs együtthatók kiszámitásával ellenőriztük. r = 0,9958-nál kisebb értéket nem kaptunk, és igy a /2/ polinomot elfogadhattuk.

A program második része az expozició, illetve - a beeső sugárzás effektiv energiájának megállapitása és a megfelelő konverzió alapján - a dózis kiszámitásának lépéseit tartalmazza. A lépéseket az 1. ábrán látható folyamatdiagramon követhetjük. A 8. lépésben az emulzióra vonatkozó energiaérzékenységi korrekciós tényezők meghatározása lineáris interpolációval történik, a látszólagos dózisviszony és az érzékenységi tényező közti összefüggésből.

Legyen F ismeretlen korrekciós tényező, amely egy q_o, a filmen talált és a kalibrációs görbéről leolvasott látszólagos dózisviszonyhoz tartozik. Legyen továbbá q_2 és q_1 ismert, a program utján bevitt látszólagos dózisvi-



szonyérték, melyhez f_2 és f_1 érzékenységi korrekciós tényező tartozik. A q_o-ra és F-re a következő egyenlőtlenségek érvényesek:

$$q_2 > q_o > q_1,$$

$$f_2 > F > f_1.$$

Definiáljuk az

$$u = \frac{\Delta f}{\Delta q} = \frac{f_2 - f_1}{q_2 - q_1}$$

hányadost, és legyen

$$f' = /q_2 - q_o/u,$$

ekkor F értékét az alábbi kifejezés adja:

$$F = f_2 - f'.$$

Mivel mindegyik korrekciós tényezőgörbe bevitele 16 ponton történt, az interpolációs hiba elhanyagolhatónak bizonyult.

A dózisszámítás pontossága

A számitás hibabecslése eddig mintegy 40 film számitógépes kiértékelésével történt. A filmeket 40-2000 mR kevert energiáju $/^{192}$Ir- és 80 kV, 2,5 Al; 97 keV; 120 keV; 160 keV E_{eff} röntgen-/sugárzással exponáltuk. A számitás teljesitette a $\pm$20%-os pontosságot, de a filmek kb. egyharmadánál a hiba $\pm$10%-nál kisebbnek adódott.

A leirt módszert még nem tekintjük befejezettnek.

A szerzők köszönetüket fejezik ki Zala Endrének és Lajos Józsefnek hasznos tanácsaikért és Bobok Évának a számitásokban nyujtott segitségéért.

IRODALOM

1. *M.Heard, B.E.Jones,* E.N.E.A. Personnel Dosimetry Symp., 1963, 89
2. *M.Heard,* A.E.R.E.-M, 1964, 1370
3. *B.E.Jones, T.O.Marshall,* J.Phot.Sci. 13/1965/121
4. *Bojtor I.,* Izotóptechnika /Budapest/ 14/1971/412
5. *E.H.Attix,* Health Phys. 13/1967/219
6. *R.S.Landauer,* Health Phys. 14/1968/57
7. *Bojtor I.,* Acta Biochim.Biophys. 6/1971/31
8. ICL Statistics, System 4, Techn.Publ.1969, No.1102

HIREK

Dr.S.Eklund, a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség főigazgatójává történő ujraválasztása alkalmából beszédet mondott az Ügynökség közgyülésén.

Abban az időben, amikor a világ atomenergia-bizottságait átszervezték, illetve nem nukleáris feladatokkal is megbizták, valamint figyelembe véve a nukleáris eljárások jelenlegi felhasználási gyakorlatát, felmerült a kérdés, szükséges-e és hasznos-e a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség. Emellett kényszeritő erővel jelentkezett az igény olyan speciális szervezet iránt, amely az atomenergia kérdéseivel nemzetközi szinten foglalkozik.

Az Ügynökség létrehozása után 16 évvel, alapokmányának két rendelkezése még mindig sarkalatos pontja tevékenységének. Ezek: a nukleáris energia felhasználásának előmozditása az egész világon, a fejlődő országok szükségleteinek szem előtt tartásával, valamint az atomenergia katonai felhasználása megakadályozásának garantálása.

A garancianyujtás, az atomfegyverkorlátozási szerződés megkötésével, uj lendületet kapott. AZ Ügynökségnek törvényadta kötelességévé vált a garancianyujtás, amely jó például szolgálhat az ezutáni fegyverkorlátozási vagy leszerelési egyezmények ellenőrzésének.

Ami a fejlődő országok segitését illeti, az Ügynökség elégtétellel figyelte néhány fejlődő ország nukleáris jellegü "visszavonulását".

A nukleáris energetika gyors fejlődése és az emberi környezet megőrzése iránti fokozott igény parancsolóan sürgette, hogy nemzetközi egyetértésre jussanak a nukleáris erőmüvek biztonságos üzemeltetésének szabályaiban, beleértve a radioaktiv hulladékok kezelését is. Az Ügynökség munkája segithet abban, hogy a közvélemény sok tagállamban fogadja el a nukleáris energiát.

A nukleáris energiának a jövőben játszott szerepe különösen jelentőssé válik az un. "energiakrizisről" folyó viták tükrében. A hagyományos energiaforrások körüli nehézségek kedvező szinben tüntetik föl az egyetlen, müszakilag jelenleg kellően fejlett alternativát: az atomenergiát. A nukleáris energia szélesebb körü elfogadását ideiglenesen hátráltatja a környezeti "pereskedés". Tehetséges környezetvédelmi szakemberek mind inkább arra a meggyőződésre jutnak, hogy mindent összevéve az atomenergia jelentősen kevesebb veszéllyel jár a környezetre nézve, mint bármely más energiatermelési mód. Nem szabad azt sem elfelejtenünk, hogy a környezetvédelemre szánt költségek az atomreaktorokba már "be vannak épitve". Ahhoz, hogy hőerőmüveket ugyanolyan tisztákká tegyünk, mint a reaktorok, jelentős kiadásokra van szükség, kéntelenitő berendezések beszerzése vagy kis kéntartalmu olaj használata miatt.

A nukleáris energia jövő fejlődése attól függ, mily mértékben tudjuk a legészszerübben felhasználni a hasadó anyagokat. Az Ügynökségnek komolyan mérlegelnie kellene a különféle reaktortipusokat, hogy felbecsülhesse a nyersanyag-felhasználásra és a környezetre gyakorolt hatásaikat. Ilymódon mérlegelni lehetne pl. a gyors- és a termikus szaporitórendszert, vagy azt, hogy kis fémtartalmu uránt vagy tóriumot érdemes-e fütőanyagnak használni.

A legtöbb, atomenergia-programmal rendelkező tagállamnak foglalkoznia kell a dusitott urán jövő beszerzési lehetőségeivel. A főigazgató sürgette a szállitókat, tegyék az Ügynökségen keresztül lehetővé, hogy a fejlődő országok az eddiginél kevesebb megkötöttséggel kaphassanak kellő mennyiségü dusitott uránt teljesitményreaktoraik számára.

A dusitott urán területén a világ egyes részeiben kritikus a helyzet. Reméljük, hogy további kooperációs vállalkozások indulhatnak könnyitésére. A kooperációs vállakozásoknak sok előnye lehet a gazdaságosság és a technológia szenpontjából, s megkönnyithetik a nemzetközi garanciák elfogadását.

Az Ügynökségnek uj feladatot jelent a nukleáris energia meghonositása a fejlődő országokban. Az a piackutatás, amelynek eredményeit nemrég tették közzé, egyik módja annak, miként segithetne az Ügynökség azoknak az országoknak, amelyek már elérték ezt a fejlettségi fokot. Reméljük, hogy a nemzeti energetikai testületek, pénzügyi és ipari szervezetek hasznosan forgatják ezt a dokumentumot a tervezés során.

Ezzel kapcsolatban nagyon megnyugtató hallani az Ügynökség számára, hogy 1973. szeptember 1-étől a Fülöp-szigeti hatóságok jóváhagyták az UNDP terv /ENSZ Fejlesztési Program/ következtetéseit, amelynek a NAÜ volt a végrehajtó szerve, s elhatározták, hogy Luzonban 600 MWe teljesitményü nukleáris egységet épitenek.

Az Ügynökségnek a nukleáris biztonság és környezetvédelem terén végzett munkája az utóbbi időben, önkéntes hozzájárulás és a prioritás átrendezése foly-

tán segitséget kapott. A tagállamokban néhány mélyreható vizsgálat folyik a nukleáris biztonsággal kapcsolatban, s az Ügynökség reméli, hogy megkapja eredményeiket, s igy ezen alapvető fontosságu szempontok és eredmények közös nevezője lehet. Segiteni tudná a tagállamok engedélyező hatóságait, azzal, hogy az atomerőmüvek biztonsági értékelésénél adódó problémákat vizsgálja.

A hulladékkezelésben sok lehetőség nyilik nemzetközi együttmüködésre. A NAÜ fontos feladata a hulladéktároló helyek kiválasztási kritériumainak meghatározása; ezeknek pl. olyan zsufolt kontinensen, mint Európa, regionálisaknak vagy nemzetközieknek kell lenniök.

Az 1972-es londoni megállapodás a tenger szennyezésének megelőzéséről a NAÜ-t nevezte meg illetékes szervként, amely meghatározza azt az aktivitásszintet, amelynél a radioaktiv anyagot már nem lehet a tengerbe bocsátani, s felhivta a feleket, hogy vegyék tekintetbe a NAÜ javaslatait, amikor engedélyt adnak más radioaktiv anyagok elsüllyesztésére. Az ENSz uj környezetvédelmi programjának is szándékában áll támogatni a NAÜ által tett bizonyos javaslatokat.

Dr.Eklund kitért a nemzetközi találkozók jelenlegi csökkentésére. Eljött az ideje annak, mondotta, hogy kevesebb, de jobban előkészitett konferenciát szervezzünk.

Ami a politikai irányvonalat illeti, az Ügynökség eddig ad hoc szakértői értekezletektől függött, amelyek szükség szerint, időről időre ültek össze. Célratörőbb lenne, ha bizonyos problémákra, pl. reaktorok telephelyének kiválasztása, reaktorok biztonsága és engedélyezése, állandó bizottságokat vagy munkacsoportokat hoznának létre.

Dr.Eklund ezután a NAÜ perifférikus tevékenységével, nevezetesen a Seibersdorfi Laboratóriummal, a Monacoi Laboratóriummal és a Trieszti Elméleti Fizikai Intézettel foglalkozott. A kormányzótanács tudomásul vette azt a szándékot, hogy ki kellene terjeszteni a monacoi laboratórium tevékenységét bizonyos, nem radioaktiv szennyezők főleg nukleáris eljárásokkal végzett vizsgálatára is. Ezt az ENSZ környezetvédelmi programja támogatná anyagilag, a NAÜ és UNESCO közös javaslata alapján. Ezzel kapcsolatban hangsulyozta a kérdésnek a garanciális analitikai laboratóriumok hálózata szempontjából vett fontosságát, s azt, hogy egyes államok ezáltal tevékeny részt vállalhatnának az Ügynökség szabályozó tevékenységében, s nem maradnának csupán ellenőrzött objektumok. Külön köszönet illeti az osztrák hatóságokat, hogy Seibersdorfban, bérlemény formájában, rendelkezésre bocsátották saját céljukra épitett berendezéseiket. A trieszti központ már 44 fejlődő ország 130 ösztöndijasát képezte ki.

Ezzel felmerült a kérdés, miképpen segiti az Ügynökség müszakilag a fejlődő országokat. Az Ügynökség hozzájárulása oly kevés, hogy ez csak tanulópénznek tekinthető /seed money/, de elegendő volt arra, hogy igen sok esetben el-

inditson egy kutatási irányt, vagy előkészitsen egy beruházást megelőző alkalmazást, s ez sokkal fontosabb, mint az adott segitség pénzértéke. Ehhez még hozzá kell venni azt, amit a fejlődő országok kormányai az UNDP-től kapnak, s igen megnyugtató, hogy e programok s kormányzati megfelelőik mind számban, mind méretben jelentősen megnőttek.

Az utóbbi 10 évben 42 fejlődő országban maradt el a mezőgazdasági termelés növekedési üteme a népszaporulat ütemétől. Az Élelmezési és Mezőgazdasági Világszervezet /FAO/ és a NAÜ atomenergia élelmiszeripari és mehőgazdasági felhasználási osztálya közös segitségét nagyrabecsülik, de ez mindig elmarad a probléma nagyságához képest. A NAÜ-nek rövid lejáratu kutatási és fejlesztési programokra több erőforrást kellene igénybevennie ahhoz, hogy segitsen a fejlődő országok sebezhető és bizonytalan táplálkozási helyzetének javitásában.

Először sikerült megkapni az önkéntes hozzájárulásoknak több mint 90%-át, értékük azonban csökkent a valutaárfolyam változása és az infláció miatt. Reméljük, a tagállamok tekintettel lesznek erre a helyzetre, amikor hozzájárulást ajánlanak fel a NAÜ önkéntes alapjának. A főigazgatót a kormányzótanács arra utasitotta, hogy hivja fel a tagállamokat, többel járuljanak hozzá az alaphoz, mint amennyit a kitüzött 3 millió dollárból eddig vállaltak.

A Titkárság, a kormányzótanács felkérésére, vizsgálatot kezdett annak felmérésére, miképpen lehetne minden lehető eszközzel biztositani a NAÜ müszaki segitségnyujtási programjának anyagi ellátását, beleértve a rendes költségvetés igénybevételét is.

A valutaárfolyam ingadozása és az infláció miatt az 1974. évi teljes költségvetés nagyobb, mint az előző két évben, de valójában nincs növekedés. A tagállamok a kormányzótanácsban eddig pozitiven nyilatkoztak e tekintetben, azzal, hogy kiegészitő ráforditást fogadtak el, hogy ezzel bizonyos mértékig védjék a már jóváhagyott programokat az árfolyamingadozástól. A Titkárságnak, a megtakaritásból, bizonyos mértékben sikerült veszteségeink egy részét ellensulyoznia.

A költségvetés programok szerinti bontása nagyobb mérvü az Ügynökségnél, mint bármely más ENSZ szervezetnél. A tagállamok részletesen kiértékelhetik, hogy egy adott program tételei miképp viszonyulnak a költségvetés egészéhez. Az uj programbontás olyan értékelésre is módot ad, hogy mit értek el a multban, s véleményt tudnak kialakitani a tennivalók relativ fontosságáról.

Figyelmet kell szentelni az ENSZ-en belül a jelenlegi hivatásos alkalmazottak bérezési rendszerében bekövetkezett csődnek /break-down/, amely már hat a személyzet moráljára is. A főigazgató azért forditott erre külön figyelmet, mert ilyen hatás az Ügynökségen is várható, s a kormányoknak állást kell foglalnia, amikor az ENSZ őszi közgyülésén lépéseket javasolnak a helyzet megjavitására.

További lépéssel közeledtünk az atomfegyverkorlátozási szerződés betartása felé, amikor ez év áprilisában, Brüsszelben, egyezmény született az Ügynökség és az atomfegyverrel nem rendelkező Euratom-államok között. Előzetes tárgyalások folynak az atomstopszerződéssel kapcsolatos garanciáról több más államal, köztük az Egyesült Államokkal és az Egyesült Királysággal, tekintettel arra, hogy felajánlották: békés célu nukleáris berendezéseiket ügynökségi garancia alá helyezik. Mindazonáltal a szerződés teljesitése lassan halad. Eddig 78 atomfegyverrel nem rendelkező állam ratifikálta, de garanciamegállapodást csak 45 kötött. A szerződést a világ hét, 100 milliónál nagyobb lélekszámu országa közül csak kettő ratifikálta: az Egyesült Államok és a SZovjetunió. Ezt nem szabad negativan értékelni, az Ügynökség azonban realisztikusan tekinti a helyzetet, s reméli,hogy 1974-ben nagy nukleáris programok kerülnek ügynökségi garancia alá.

Nem is kell emliteni, hogy a folytonos atomfegyverkisérletek nem hatnak bátoritólag olyan államok részéről, amelyeknek az atomstopegyezményhez való csatlakozását sürgetjük. A kisérletek teljes felfüggesztése jelentené azt a hozzájárulást, amellyel az atomhatalmak kimutathatnák hajlandóságukat az egyezmény VI. cikkelyében és bevezetőjében vállalt kötelezettségük betartására. Pozitiv lépést jelentene, ha egyezményt kötnének arról, hogy abbahagyják speciális, atomfegyverhez használt hasadó anyagok gyártását; ezt a leszerelési bizottság konferenciája is támogatja. Az Ügynökség szolgálatait lehetne felhasználni, hogy az igy felszabaduló anyagokat más országokba, békés felhasználásra átirányitsák. Igy az Ügynökség az alapitói által előrelátott egyik alapfeladatát teljesithetné. Megfigyelhető bizonyos fejlődés e téren, habár az atomstopszerződésen kivül. A legfontosabb talán, hogy sok, az atomfegyverkezés küszöbén álló állam reálisabb magatartást vett fel saját atomfegyverkészlete értékét és hasznosságát illetően, s hogy felismerte: érdekeit nem az atomfegyverek létrehozása szolgálja a legjobban.

1975-re előretekintve, az atomstopszerződés beválásáról rendezendő konferencia lehetőséget ad majd a kormányoknak, hogy megállapithassák, mekkora előrehaladást tettek a korlátozásban. Az Ügynökség magabiztosan vesz majd részt ezen a konferencián, abban a tudatban, hogy megtette a magáét. A Garanciabizottságnak és a tagállamok azon hajlandóságának köszönhetően, hogy a hasadó anyagok nemzeti nyilvántartási rendszerét bevezessék, az Ügynökségnek sikerült a garanciarendszert az atomstopegyezménnyel összhangba hoznia.

A Finnországban mostanában tartott Pugwash-konferencia egyhanguan az Ügynökséget ajánlotta az atomstopegyezmény keretén belüli garancia ellátására, s arra hivott fel, hogy a NAÜ hatáskörét erősiteni és támogatni kell.

A jövőt illetően sok kérdésre kell az Ügynökségnek felkészülnie. A raktáron levő, a felhasznált és a mozgó plutónium mennyisége minden atomfegyver nélkü-

MTA Könyvtára
Periodika 18/19 74 ez.

li országban, a következő 10 évben néhányszor tiz kilogramról több, mint 50 tonnára fog nőni. Lépést tud-e ezzel tartani a NAÜ garanciarendszere? Tehet-e többet és tegyen-e többet az Ügynökség az anyagok fizikai biztositásában? Milyen hatással lesz a garanciarendszerre, ha jelentős előrehaladást érnek el a fuzió megvalósitásában?

Az Ügynökségnek régi és szoros kapcsolata van az Európai Gazdasági Közösség Nukleáris Energia-ügynökségével /NEA/. AZ uránforrások közös felmérése és az élelmiszerbesugárzási közös téma csak két példa a tagállamok által is nagyrabecsült közös munkára.

A NEA tagjai és társult /associate/ tagjai egyszersmind a NAÜ tagállamai is, és a NAÜ általános keretei között is résztvesznek az olyan nagyobb nukleáris energiaprogramokban, amilyeneket éppen emlitettünk. Hacsak nem leszünk elég óvatosak, ez a munka megkettőződésére vezethet, s afféle gazdagok klubjának kialakulására, amely 1980-ra a világ nukleáris kapacitásának 80-90%-át fogja képviselni. Bármiféle csoportokra való szakadás azonban, sugallja bár a földrajzi helyzet, az ideológia vagy a fejlődés adott stádiuma, olyan lépés lenne, amelyet a NAÜ-nek el kell kerülnie.

Az atomstopszerződés VI.cikkelyének módositása már érvényben van,s az uj,kibővitett kormányzótanács fogja végrehajtani, amely teljesebben képviselheti a fejlődő országokat. A főigazgató üdvözölte az Ügynökség két uj tagját: a Német Demokratikus Köztársaságot és Mongóliát. Valójában egyikük sem ujonc, hiszen mindkettő már aláirta a garanciaszerződést az Ügynökséggel.

Közhellyé vált, hogy az Ügynökség küzdelmes éveknek néz elébe. A szervezet valódi próbája, bármikor, az: vajon kielégit-e valamilyen szükségletet, és hasznos-e tagállamainak. Kell, hogy bátorságunk legyen megszokottá és időszerütlenné vált munkákat abbahagyni,és uj kezdeményezéseket felkarolni, programunkat kiszélesiteni.

General Conference Press Release, C/XVII/4, Vienna, szept.18.

MAGYAR
TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
KÖNYVTÁRA