

EUR 333.i

JUN 22 1963

MASTER

COMUNITÀ EUROPEA DELL'ENERGIA ATOMICA - EURATOM

NSA
rd

CONF-142-1

**DETERMINAZIONE DEL TRITIO
CON SCINTILLATORE LIQUIDO
NELLE URINE DEL PERSONALE
DI UN CENTRO NUCLEARE**

OAK RIDGE INSTITUTE
OF NUCLEAR STUDIES
Incorporated
POST OFFICE BOX 2000
OAK RIDGE, TENNESSEE

di

V. CAMERA e M. GIUBILEO

1963



Centro Comune di Ricerca Nucleare
Stabilimento di Ispra - Italia

Servizio Sanitario

Testo presentato al XXV Congresso Nazionale di Medicina del Lavoro
Taormina, Italia - 16/10/1962

*Conf.
paper*

DISCLAIMER

This report was prepared as an account of work sponsored by an agency of the United States Government. Neither the United States Government nor any agency Thereof, nor any of their employees, makes any warranty, express or implied, or assumes any legal liability or responsibility for the accuracy, completeness, or usefulness of any information, apparatus, product, or process disclosed, or represents that its use would not infringe privately owned rights. Reference herein to any specific commercial product, process, or service by trade name, trademark, manufacturer, or otherwise does not necessarily constitute or imply its endorsement, recommendation, or favoring by the United States Government or any agency thereof. The views and opinions of authors expressed herein do not necessarily state or reflect those of the United States Government or any agency thereof.

DISCLAIMER

Portions of this document may be illegible in electronic image products. Images are produced from the best available original document.

AVVERTENZA

Il presente documento è stato elaborato sotto gli auspici della Commissione della Comunità Europea dell'Energia Atomica (EURATOM).

Si precisa che la Commissione dell'EURATOM, i suoi contraenti, o qualsiasi altra persona che agisca in loro nome :

- 1° — Non garantiscono l'esattezza o la completezza delle informazioni contenute nel presente documento, né che l'uso di qualsiasi informazione, dispositivo, metodo o processo, descritti nel presente documento, non arrechino pregiudizio ai diritti sulle opere dell'ingegno e sulle invenzioni industriali.
- 2° — Non assumono alcuna responsabilità per i danni che dovessero risultare dall'uso di informazioni, dispositivi, metodi o processi divulgati con il presente documento.

Questa relazione è messa in vendita al prezzo di 40,— franchi belgi, su richiesta da indirizzare a : PRESSES ACADEMIQUES EUROPEENNES — 98, Chaussée de Charleroi, Bruxelles 6.

Il pagamento va effettuato a mezzo di versamento :

- alla BANQUE DE LA SOCIETE GENERALE (Agence Ma Campagne) — Bruxelles — conto N° 964.558,
- alla BELGIAN AMERICAN BANK AND TRUST COMPANY — New York — conto N° 121.86,
- alla LLOYDS BANK (Foreign) Ltd. — 10 Moorgate, London E.C.2,

menzionando il riferimento : « EUR 333.i — Determinazione del tritio con scintillatore liquido nelle urine del personale di un centro nucleare ».

Per la riproduzione di questo documento ci si è serviti della miglior copia disponibile.

EUR 333.i

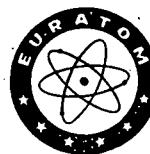
COMUNITÀ EUROPEA DELL'ENERGIA ATOMICA - EURATOM

**DETERMINAZIONE DEL TRITIO
CON SCINTILLATORE LIQUIDO
NELLE URINE DEL PERSONALE
DI UN CENTRO NUCLEARE**

di

V. CAMERA e M. GIUBILEO

1963



**Centro Comune di Ricerca Nucleare
Stabilimento di Ispra - Italia**

Servizio Sanitario

**Testo presentato al XXV Congresso Nazionale di Medicina del Lavoro
Taormina, Italia - 16/10/1962**

THIS PAGE
WAS INTENTIONALLY
LEFT BLANK

I N D I C E

1. Metodica	6
2. Ricerche preliminari	7
3. Criteri per il controllo del personale esposto	10
4. Dati ottenuti	10
5. Bibliografia	13

ELENCO DELLE TABELLE E FIGURE

Tab. 1	Conteggi su urine normali : 9 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti	8
Tab. 2	Conteggi su urine normali addizionate di HTO : 9 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti	8
Tab. 3	Conteggi su urine di persone esposte professionalmente all'inalazione di tritio : 21 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti	9
Tab. 4	Livelli medi di tritio nelle urine dei lavoratori, divisi per gruppi di lavoro e per anno	13
Fig. 1	Tritio nelle urine del soggetto A.	12
Fig. 2	Tritio nelle urine del soggetto B.	12

THIS PAGE
WAS INTENTIONALLY
LEFT BLANK

DETERMINAZIONE DEL TRITIO CON SCINTILLATORE LIQUIDO NELLE URINE DEL PERSONALE DI UN CENTRO NUCLEARE

Riassunto

Su 96 dipendenti di un Centro di ricerca nucleare, ammessi a lavorare intorno ad un reattore raffreddato e moderato ad acqua pesante, durante 9 mesi è stata controllata la concentrazione del tritio nelle urine. Complessivamente 683 determinazioni sono state eseguite mediante conteggio degli impulsi beta in liquido scintillatore; l'apparato rivelatore, con fototubi in coincidenza refrigerati, aveva un'efficienza di 8%.

Nel 50% dei campioni esaminati la concentrazione del tritio era inferiore alla soglia di lettura (0,1 microcurie/litro); il livello più elevato riscontrato è stato di 1,6 microcurie/litro, corrispondente al 5% della C.M.A.. In 2 casi di contaminazione interna è stato possibile verificare che la vita media biologica del tritio è di 10-12 giorni.

Summary

The concentration of tritium was measured for 9 months in the urine of 96 dependents of a nuclear Center, who worked around a reactor which is moderated and cooled by heavy water. A total of 683 determinations were done by counting the beta impulses in a liquid scintillation counter. The apparatus and phototubes in coincidence were refrigerated and had an efficiency of 8%.

In 50% of the samples examined the concentration of tritium was inferior to the reading threshold (0.1 microcurie/liter). The highest level seen was 1.6 microcurie/liter which corresponds to 5% of the C.M.A.. In 2 cases of internal contamination it was possible to verify the biological half-life of tritium which is 10-12 days.

La determinazione del tritio nelle urine o in altri materiali ai fini di un controllo tossicologico è stata argomento di numerose ricerche e pubblicazioni (1, 2): l'interesse degli scienziati è sorto con lo sviluppo delle ricerche nucleari ed è stato stimolato, oltre che dalle caratteristiche biologiche del radioelemento, anche dalla difficoltà tecnica dell'analisi.

Il laboratorio tossicologico del nostro Centro di Ricerche Nucleari ha dovuto affrontare questo problema per la sorveglianza del personale esposto presso il reattore Ispra-1 (raffreddato e moderato ad acqua pesante) ad inalare vapori di acqua tritiata o, in minor misura, tritio gassoso.

E' noto che nell'acqua pesante (D_2O) dei reattori nucleari, sotto l'influenza dell'irraggiamento neutronico, si puo' avere la trasformazione del deuterio in tritio; sebbene in regime normale la circolazione avvenga in circuito chiuso, è possibile che in occasione di operazioni particolari o di guasti si verifichi una fuga di vapori con conseguente contaminazione dell'aria nell'ambiente circostante. La CMA di tritio nell'aria (40 ore/ settimana, ICRP) è di 5 microcurie/m³ e il maximum body burden per l'uomo è 1 millicurie; tenuto conto della distribuzione ubiquitaria e della vita media biologica (valutata in 10-12 giorni) il livello massimo ammissibile nelle urine è di 30 microcurie/litro.

1. Metodica

Il metodo da noi adottato è quello del conteggio in coincidenza mediante liquidi scintillatori, già descritto da altri autori (3, 4, 5). Strumento di rivelazione e conteggio: un apparecchio Carbotrimètre Belin, dotato di due fototubi in coincidenza raffreddati a circa -10°, la cui efficienza di conteggio per le radiazioni beta del tritio è risultata del 1°8%; il rumore di fondo, misurato con campione in bianco, è risultato di 55-60 c.p.m. Il liquido scintillatore adoperato è composto da una miscela di xilolo (5 parti in volume) 1,4-diossalano (5 parti) e alcool etilico assoluto (3 parti) addizionata di naftalina (80 grammi/litro) P.P.O. (5 grammi/litro) e P.O.P.O.P. (0,05 grammi/litro).

Da un campione delle 24 h. vengono prelevati cc 30 d'urina, agitati con circa gr 1 di carbone e filtrati: cc 1 del filtrato così decolorato è mescolato a cc 20 di scintillatore e dopo 10 minuti di permanenza in frigorifero (tempo necessario per raggiungere l'equilibrio termico) viene iniziato il conteggio degli impulsi dovuti alla radioattività del tritio.

Collateralmente vengono preparati nello stesso modo altri due campioni, sostituendo l'urina nel primo (bianco) con cc 1 di acqua distillata e nel secondo (standard) con cc 1 di HTO contenente 0,1 microcurie di T; con quest'ultima misura si determina il rendimento dell'intero sistema.

Il contenuto di tritio si calcola mediante la formula:

$$T \text{ (microcurie/litro)} = \frac{100 - (a-b) \cdot 1000}{R \times 2,22 \cdot 10^6}$$

dove: a = c.p.m. del campione in esame, b = c.p.m. del bianco, R = rendimento del sistema.

2. Ricerche preliminari

Poichè per la determinazione del tritio nelle urine con scintillatori liquidi molti AA raccomandano la distillazione (6-7) per eliminare i fenomeni di spegnimento (quenching) dovuti ai pigmenti colorati e ad altre sostanze contenute nelle urine, mentre altri consigliano la decolorazione con carbone attivo (8) oppure il conteggio sulle urine senza alcun pretrattamento, abbiamo ritenuto opportuno procedere ad uno studio comparativo di queste tre procedure:

1. Urine di persone non esposte sono state sottoposte a conteggio dopo distillazione, dopo decolorazione e intiere (cioè senza alcun pretrattamento). La distillazione delle urine (cc 10) è stata effettuata in presenza di toluene (cc 20) e l'analisi eseguita su cc 1 di distillato in cc 20 di scintillatore. I dati ottenuti sono riportati nella Tab. 1.

2. Un'altra serie di determinazioni è stata eseguita con analoghe modalità su urine-controllo addizionate di quantità note di HTO. Sono stati preparati 9 campioni di cc 50, con l'aggiunta di 0,2 microcurie al N° 1 - 2 - 3 - 4 - 5 - 6, di 0,5 microcurie al N° 7, di 1 microcurie al N° 8 e di 2 microcurie al N° 9; inoltre è stato allestito un campione d'urina senza tritio (N° 10) e un campione di tritio (0,2 microcurie/cc 50) in acqua distillata (N° 11).

3. Campioni di urine prelevate da lavoratori esposti ad inalare tritio o composti sono stati esaminati con le modalità usate per le 2 prove precedenti (Tab. 3).

Da un esame delle Tab. 2 e 3 appare che l'analisi sulle urine intiere comporta un errore del 20-60% in meno rispetto alle urine distillate; l'errore è principalmente imputabile al "quenching" dovuto ai pigmenti urinari e variabile da campione a campione. Pertanto a nostro parere l'analisi sulle urine intiere non è applicabile.

Tab. 1 - Conteggi su urine normali: 9 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti.

Campione Nº	Urine intiere c.p.m.	Urine decolorate c.p.m.	Urine distillate c.p.m.
1	54	54	53
2	57	57	55
3	53	57	58
4	56	56	56
5	59	56	52
6	55	57	61
7	55	54	57
8	56	55	54
9	55	57	58
media	55,5	55,9	56,0

Tab. 2 - Conteggi su urine normali addizionate di HTO: 9 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti.

Campione Nº	HTO/oc 50 microcurie	Urine intiere o.p.m.	Urine decolorate o.p.m.	Urine distillate o.p.m.
1	0,2	562	686	723
2	0,2	542	732	721
3	0,2	505	753	785
4	0,2	569	721	745
5	0,2	560	722	747
6	0,2	539	705	777
7	0,5	1448	1718	1800
8	1,0	2657	3249	3656
9	2,0	4759	6784	7151
media		1238	1774	1901
10	0,0	56	55	54
11	0,2		in H ₂ O distillata 770	

Tab. 3 - Conteggi su urine di persone esposte professionalmente all'inalazione di tritio: 21 campioni esaminati con 3 diversi procedimenti.

Campione Nº	Urine intiere c.p.m.	Urine decolorate c.p.m.	Urine distillate c.p.m.
1	88	98	101
2	64	70	70
3	73	99	96
4	79	96	96
5	77	92	91
6	128	149	157
7	89	101	103
8	91	95	107
9	93	116	116
10	100	110	112
11	60	76	80
12	98	119	116
13	106	111	113
14	73	96	94
15	110	128	136
16	86	101	108
17	217	309	306
18	92	134	145
19	104	126	136
20	73	123	127
21	248	319	294
media	101	127	128

L'errore dell'analisi sulle urine decolorate varia tra 0 e -10% rispetto al metodo per distillazione; considerando che questa approssimazione puo' essere soddisfaciente ai fini del controllo tossicologico e tenendo presente il minor tempo necessario all'analisi (assai importante per un laboratorio che esegue decine di controlli al giorno), abbiamo stabilito di adottare per la nostra routine il metodo per decolorazione.

L'analisi sul distillato offre la maggior garanzia di precisione e soprattutto di specificità per il tritio; tuttavia, tenuto conto del mag-

gior lavoro che essa implica, ricorriamo ad essa solo nei casi in cui precisione e specificità devono essere assolute.

In conclusione, con il metodo descritto è possibile determinare concentrazioni di tritio nelle urine fino a un livello minimo di 0,1 microcurie/litro. Dato che il livello massimo ammissibile nelle urine delle persone professionalmente esposte (40 ore/settimana) è di 30 microcurie/litro, il margine di sicurezza garantito dal metodo è molto elevato.

3. Criteri per il controllo del personale esposto

Il controllo tossicologico sul personale esposto ad assorbimento di tritio è iniziato nel mese di ottobre 1961. Dopo un periodo iniziale dedicato alla valutazione dell'entità dell'esposizione, sulla base delle prime determinazioni di tritio nelle urine e nell'aria e di sopralluoghi sui posti di lavoro, la periodicità dei prelievi fu stabilita come segue:

1. Persone addette all'esercizio del Reattore: 1 controllo al mese, e inoltre ad ogni occasione di contaminazione (lavori di manutenzione, cambio degli elementi di combustibile). In tal modo una stessa persona è stata spesso controllata 2-3-4 volte al mese, affiancando alla ricerca del tritio quella di altri emettitori beta o gamma nelle urine.
2. Persone dei Servizi di ricerca (Chimica nucleare, Neutronica sperimentale, Spettrometria neutronica, Fisica sanitaria) ammesse a frequentare l'area sperimentale del Reattore ed esposti alla contaminazione in modo discontinuo (per diverse ore al giorno): controllo quindicinale.

Attraverso un apposito modulo veniva richiesto all'interessato un campione delle urine delle 24 ore, e il Servizio Sanitario si incaricava del recapito e del ritiro dei recipienti di polietene adatti al prelievo.

4. Dati ottenuti

Nel periodo ottobre 1961 - giugno 1962 sono stati effettuati su 96 persone 683 analisi di tritio nelle urine: il 40% delle determinazioni rivelava concentrazioni da 0,1 a 1,6 microcurie/litro, mentre nel 10% dei casi si riscontravano livelli intermedi tra 0,1 microcurie/litro e la soglia di lettura, ed il 50% dei campioni presentava una attività inferiore ai limiti di sensibilità del metodo adottato.

E' stato tra l'altro osservato che numerosi campioni, durante la primavera 1962, denotavano una contaminazione da tritio in notevole ascesa rispetto ai valori iniziali; in seguito il significato dei dati urinari è

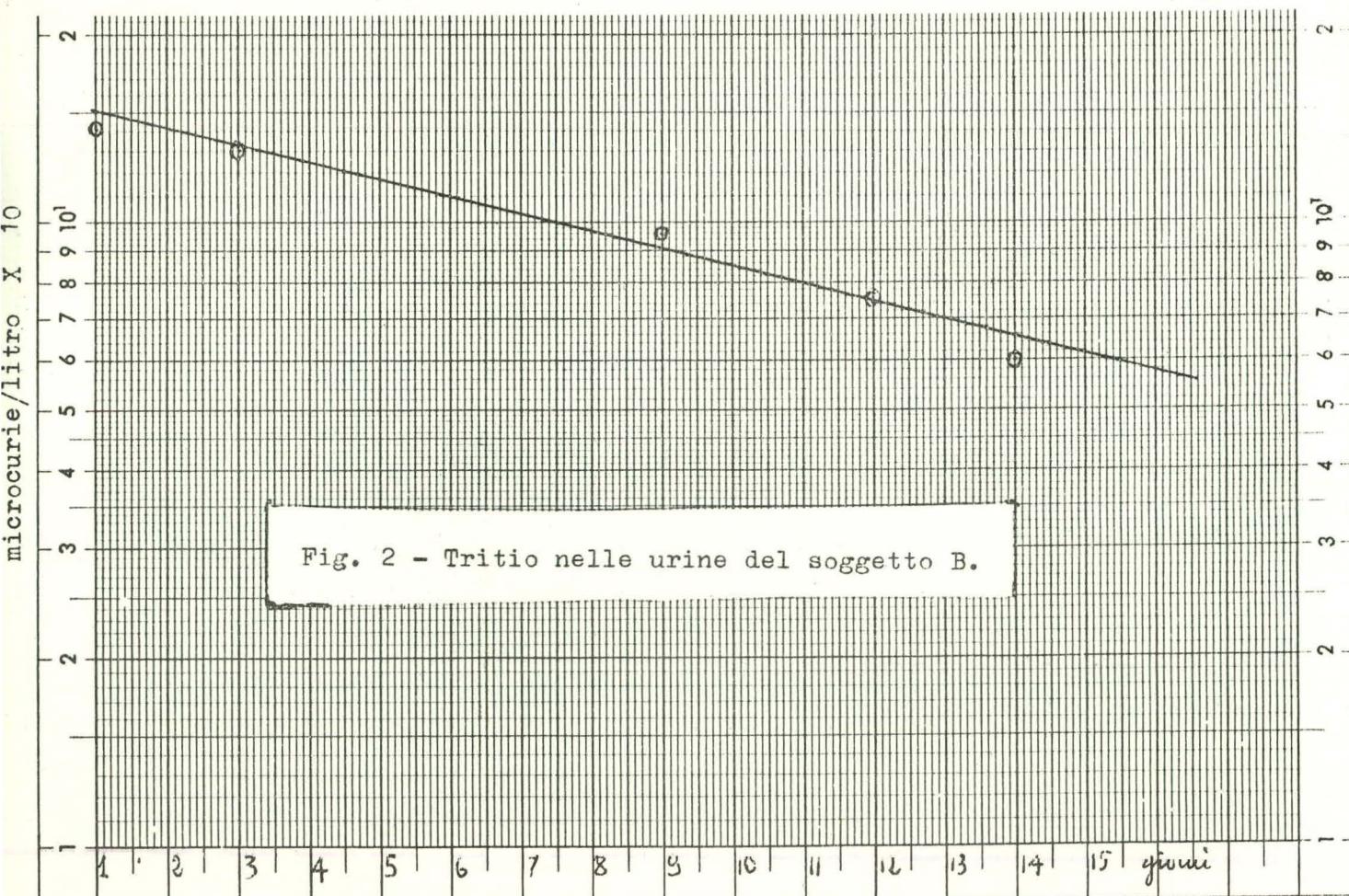
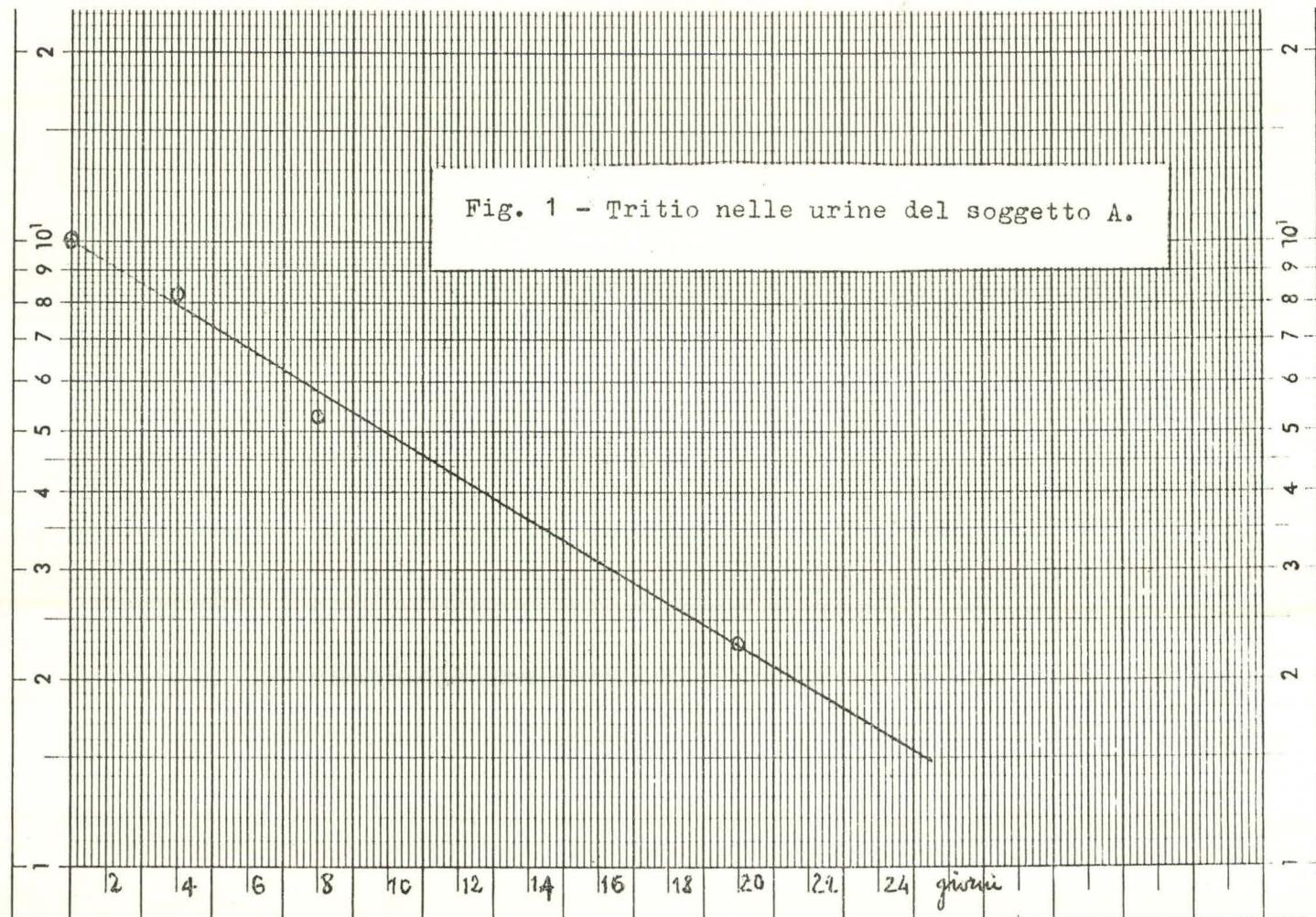
stato confermato dalle analisi dell'aria: si è trovato infatti un aumento del tritio nella sala del Reattore fino a 0,550 microcurie/m³ d'aria (giugno 1962): questo aumento è probabilmente da mettersi in relazione con il fatto che nel novembre 1961 la concentrazione di tritio nell'acqua pesante del Reattore era di 143,5 microcurie/cc mentre nel giugno 1962 era salita a 367 microcurie/cc.

Non è stato possibile stabilire una esatta correlazione fra la concentrazione di tritio esistente nell'acqua pesante e nell'aria ed i livelli urinari: in effetti le varianti sono molteplici, e tra esse giocano soprattutto la rapida variabilità della contaminazione atmosferica nel tempo e nello spazio (dovuta al succedersi delle diverse operazioni e al condizionamento dell'aria) e l'irregolarità nella durata dell'esposizione. Tuttavia un tentativo di valutazione del rapporto tra esposizione e valore medio della contaminazione interna è stato fatto raggruppando le persone in 7 gruppi relativamente omogenei dal punto di vista del tipo di occupazione. La Tab. 4 riporta le medie dei livelli di tritio riscontrati nelle persone dei singoli gruppi, distinte per il 1961 e il 1962; questa distinzione ha un significato se si tenga presente che nel 1962 sono stati ripetutamente registrati aumenti della concentrazione di tritio nell'aria di 3-4 volte rispetto al livello base. I dati esposti in tabella mostrano che:

1. in complesso i valori sono bassi rispetto alla C.M.A.;
2. la variabilità dei valori è limitata, ciò che è logico attendersi da cifre relative ad un unico ambiente;
3. un aumento della contaminazione nel tempo si è avuto solo per la Spettrometria neutronica, giustificato dal reale intensificarsi del lavoro al Reattore per quel Servizio;
4. i gruppi caratterizzati da valori vicini al minimo determinabile sono quelli che realmente hanno una frequenza media al Reattore sporadica: infatti le persone addette al condizionamento vi entrano solo per occasionali operazioni di manutenzione, quelle della Fisica sanitaria per i loro turni di sorveglianza ambientale e quelle della Chimica nucleare per le saltuarie operazioni connesse con le analisi per attivazione.

Individualmente, i livelli di contaminazioni più elevati (comunque inferiori al 6% della DMA) si sono verificati nel personale addetto al cambio degli elementi di combustibile e nelle persone dei Servizi di ricerca (Spettroscopia neutronica, Neutronica sperimentale).

Abbiamo potuto tracciare due curve di vita media biologica (Fig. 1-2)



Tab. 4 - Livelli medi di tritio nelle urine dei lavoratori, divisi per gruppi di lavoro e per anno.

	ESERCIZIO	REATTORE	1961		1962	
			Nº esami	conc. media T microcurie/litro	Nº esami	conc. media T microcurie/litro
Operatori e sala controllo			57	0,24	222	0,19
Manutenzione, pulizia e magazzino			39	0,18	125	0,17
Impianti condizionamento aria			12	0,10	53	0,10
FISICA SANITARIA			12	0,10	55	0,11
SPETTROMETRIA NEUTRONICA			13	0,10	41	0,17
NEUTRONICA Sperimentale			-	-	29	0,16
CHIMICA NUCLEARE			6	0,10	19	0,10
Totali			139		544	

riguardanti due persone che, in occasione di operazioni speciali effettuate nella sala del Reattore, avevano respirato quantità di tritio tali da determinare una concentrazione nelle urine superiore a 1 microcurie/litro. Queste due persone per circa 20 giorni non hanno più avuto esposizione al tritio, e pertanto è stato possibile calcolarne la vita media biologica, risultata di 10 giorni per una persona (Fig. 1) e di 12 giorni per l'altra (Fig. 2). Questi dati sono in accordo con quelli riportati dalla letteratura.(9).

5. Bibliografia

1. FOSKETT A.C.: "Tritium detection and measurement". AERE, Bibl. 133, HL 1396 (1961).
2. "Tritium: dosage, préparation de molécules marquées et applications biologiques". AIEA, Review Series 2 (1960).
3. FARMER E.C., BERSTEIN I.A.: Science, 117, 279 (1953).
4. HAYES F.N., GOULD R.: Science, 117, 480 (1953).
5. BELL C.G. Jr., HAYES F.N.: "Liquid scintillation counting". Pergamon Press, London (1958).

6. HUTCHINSON W.P.: "The determination of tritiated water in urine by liquid scintillation counting". AERE, R 3425, HL/4180 (1960).
7. SANDALLS J.: "A method for routine determinations of tritium in urine using a coincidence liquid scintillation counting". AERE, R 3716 (1961).
8. "Méthodes d'analyse radiochimique". Rapport Comité d'experts mixte OMS/FAO 173 (1959).
9. PINSON E.A., LANGHAM W.H.: "Physiology and toxicology of tritium in man". J. Appl. Physiol., 10, 108 (1957).