

Methoden zur Freigabe in der Nuklearmedizin
Schriftenreihe, Heft 9/2023
– Anlage 3 –

Qualifizierung von Methoden
zur Vereinfachung der Freigabeentscheidung in der Nuklearmedizin
unter Gewährleistung der Übertragbarkeit
auf andere Anwendungsgebiete

Bericht zu Arbeitspaket 3 (AP 3):
Durchführung des Messprogramms

M. Sc. R. Gehr, Dr. S. Thierfeldt, Dr. O. Nitzsche, Dr. R. Kunz, M. Sc. S. Rohmann
Brenk Systemplanung GmbH, Aachen

Im Auftrag des Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung	8
2	Aufgabenstellung AP 3 und Umsetzung	10
3	Messungen an beta-/gammastrahlenden Radionukliden	11
3.1	Hintergrundinformation	11
3.2	Zielsetzung, Planung und Durchführung der Messungen	11
3.3	Versuchsplan	13
3.3.1	Ablauf Kontamination typischer Verbrauchsmaterialien	13
3.3.2	Kontrolle der Messtechnik	14
3.3.3	Auswertung der Messungen an flächig ausgebreiteten Verbrauchsmaterialien	14
3.3.3.1	Umrechnung der Zählrate in die flächenbezogene Aktivität	14
3.3.3.2	Interpretation der Formel (1) mittels eines „Kompensationsfaktors“ für die Anwendung in der Freigabe	16
3.3.3.3	Nachweisgrenzen	17
3.3.4	Bestimmung des Restgehalts an Flüssigkeit in Spritzen	17
3.4	Durchführung der Versuche mit I-125	18
3.4.1	Grundlagen zur Freigabe von mit I-125 kontaminierten Reststoffen	18
3.4.2	Kontamination der Verbrauchsmaterialien	18
3.4.3	Durchführung und Auswertung der Messung	20
3.4.3.1	Messergebnisse in Form von Zählraten	20
3.4.3.2	Vorgehensweise zur Umrechnung der Zählraten in Aktivitäten	20
3.4.3.3	Messunsicherheiten	23
3.4.3.4	Eignung des Verfahrens für die Freimessung	23
3.5	Durchführung der Versuche mit Lu-177m	24
3.5.1	Grundlagen zur Freigabe von mit Lu-177m kontaminierten Reststoffen	24
3.5.2	Eingangsmessung des Lu-Präparates	24
3.5.3	Kontamination der Verbrauchsmaterialien	25
3.5.4	Durchführung und Auswertung der Messung	25
3.5.4.1	Messergebnisse in Form von Zählraten	25
3.5.4.2	Nulleffektmessungen	26
3.5.4.3	Vorgehensweise zur Umrechnung der Zählraten in Aktivitäten	26
3.5.4.4	Messunsicherheiten	29
3.5.5	Rückschluss auf die Aktivität von Lu-177m und Einhaltung der Freigabewerte insgesamt	30
3.6	Durchführung der Versuche zur Bestimmung der Restaktivität in Einwegspritzen	31
4	Messungen an alphastrahlenden Radionukliden	32
4.1	Hintergrundinformation	32
4.2	Zielsetzung, Planung und Durchführung der Messungen	32
4.3	Durchgeführte Messungen [BAY 21]	32
4.4	Messergebnisse [BAY 21]	33
4.5	Schlussfolgerungen für die Freigabe von alphastrahlenden Radionukliden in Flüssigkeiten	36

5	Handlungsanleitungen zu Freigabemessungen	39
5.1	Ableitung eines Kompensationsfaktors für Freigabemessungen an charakteristischem Messgut in nuklearmedizinischen Einrichtungen.....	39
5.2	Handlungsanleitung zur Freigabe für die Direktmessung von beta-/gammastrahlenden Wirknukliden	41
5.3	Handlungsanleitung zur Freigabe bei Aktivitätsbestimmung des freigaberelevanten Radionuklids aus Messungen von beta-/gammastrahlenden Radionukliden.....	44
5.4	Handlungsanleitung zur Freigabe für alphastrahlende Radionuklide	44
5.5	Empfehlung der SSK.....	46
6	Danksagung	47
7	Literaturverzeichnis	48
8	Anhang A: Monte-Carlo-Simulationen für die Messungen mit Kontaminationsmonitoren	50
8.1	Vorgehensweise und Begründung für die Monte-Carlo-Simulationen.....	50
8.2	Aufbau des MCNP-Modells.....	50
8.3	Abhängigkeit der Effizienz vom Untergrund, auf dem sich das Messgut befindet.....	52
8.4	Abhängigkeit der Effizienz vom Abstand zwischen Messgut und Detektor.....	54
8.5	Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke einer Abschirmschicht.....	56
8.6	Verlauf der Effizienz für Elektronen als Funktion des Abstands mit und ohne Abschirmmaterial.....	59
8.7	Einfluss benachbarter Aktivität auf das Messergebnis	60
8.8	Einfluss der Position einer lokalisierten Aktivität unterhalb des Detektors.....	61
9	Anhang B: Bewertung der Messunsicherheit	63
9.1	Vorgehensweise.....	63
9.2	Messgeometrie.....	64
9.3	Unsicherheiten der Aktivitätsbelegung des Messguts	65
9.3.1	Unsicherheit der Aktivitätsbestimmung der Ausgangslösung	65
9.3.2	Unsicherheit bei der Applikation der Aktivität mittels Pipettierung.....	65
9.3.3	Gesamtunsicherheit der Aktivitätsbelegung des Messguts.....	66
9.4	Unsicherheiten bei der Messung.....	67
9.4.1	Abstand zwischen Messgut (Aktivität) und Messgerät	67
9.4.2	Einfluss des Abstands auf die Effizienz.....	67
9.4.3	Einfluss der Materialdicke der Abschirmung.....	69
9.4.4	Einfluss der Messposition	70
9.4.5	Angaben der Messgerätehersteller zur Unsicherheit des Wirkungsgrades bei Kontaktmessung.....	72
9.4.5.1	CoMo 170, NUVIA Instruments GmbH	72
9.4.5.2	LB 124 SCINT, Berthold Technologies Ltd.	72
9.5	Berechnung der Gesamtunsicherheit.....	72
9.5.1	Genereller Ansatz.....	72
9.5.2	I-125 mit Abschirmung durch Handschuhmaterial.....	73
9.5.3	I-125 ohne Abschirmung durch Handschuhmaterial.....	74
9.5.4	Lu-177 mit Abschirmung durch Handschuhmaterial.....	74
9.5.5	Lu-177 ohne Abschirmung durch Handschuhmaterial.....	75

10	Anhang C: Modellierung der Selbstabsorption einer Schicht aus NaI	76
10.1	Hintergrund	76
10.2	Mögliche Selbstabsorption in einer NaI-Schicht.....	76
10.3	Einfluss der Kontaminationsschichtdicke bei I-125	77
10.3.1	Einfluss der die Kontamination tragenden Schichtdicke	77
10.3.2	MCNP-Modell zur Berücksichtigung des Massenschwächungskoeffizienten des NaI	78
10.4	Praktische Relevanz.....	81
11	Anhang D: Durchführung der Versuche mit Cr-51	82
11.1	Grundlagen zur Freigabe von mit Cr-51 kontaminierten Reststoffen	82
11.2	Kontamination der Verbrauchsmaterialien.....	82
11.3	Messergebnisse	82
12	Anhang E: Ablaufschema Freigabeverfahren.....	84

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Ablauf der Versuchsvorbereitung und -durchführung für die mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien (von den drei gezeigten Handschuhen wurden zwei in die Messungen einbezogen)	20
Abbildung 2: Abstandsabhängigkeit der relativen Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Elektronen und Photonenstrahlung für I-125 (relative Werte, Abschirmdicke 0 μm).....	21
Abbildung 3: Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für I-125 (relative Werte) (für Abstand 7 mm)	21
Abbildung 4: Mit Lu-177/Lu-177m kontaminierte Verbrauchsmaterialien und Messungen	25
Abbildung 5: Abstandsabhängigkeit der relativen Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Betastrahlung, Elektronen und Photonenstrahlung für Lu-177m (relative Werte).....	27
Abbildung 6: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des Materials für Lu-177	28
Abbildung 7: Detektierte α -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf verschiedene Materialien	34
Abbildung 8: Detektierte α -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf ein Papierhandtuch zu verschiedenen Zeitpunkten	34
Abbildung 9: Relative Abschirmung der α -Strahlung.....	35
Abbildung 10: Detektierte $\beta\gamma$ -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf verschiedene Materialien	36
Abbildung 11: Aufbau des Modells für die Messgeometrie und den Detektor (schematisch, nicht maßstäblich)	51
Abbildung 12: Erläuterung der Abstände bei der Messgeometrie (schematisch, nicht maßstäblich)	51
Abbildung 13: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen von 100 keV mit und ohne Untergrund unter dem Messgut, ohne Berücksichtigung der Abschneideenergie im Detektor.....	53
Abbildung 14: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen von 50 keV mit und ohne Untergrund unter dem Messgut, ohne Berücksichtigung der Abschneideenergie im Detektor.....	53
Abbildung 15: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen zwischen 50 keV und 700 keV (oben in absoluten Werten, unten in relativen Werten).....	54
Abbildung 16: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen zwischen 50 keV und 700 keV (oben in absoluten Werten, unten in relativen Werten).....	55
Abbildung 17: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen von 100, 300 und 500 keV für Abschirmmaterialien mit Dicken zwischen 0 und 200 μm	57
Abbildung 18: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen von 30, 100 und 500 keV für Abschirmmaterialien zwischen 0 und 200 μm	58
Abbildung 19: Verlauf der Effizienz für Elektronen von 700 keV, die das Messgut alle parallel im Winkel 0° (Vorwärtsrichtung), 60° und 78° zur Flächennormalen verlassen, für Dicken der Abschirmung zwischen 0 und 200 μm (unterschiedliche Ordinaten!)	60

Abbildung 20: Untersuchung der Einstrahlung einer neben der Messanordnung befindlichen weiteren Quelle	61
Abbildung 21: Referenzfall (links) und Variationen der Position kleiner, lokalisierter Quellen (je ca. 9 cm ²) gleicher Aktivität unter dem Detektor (nicht maßstäblich).....	62
Abbildung 22: Abhängigkeit der Detektoreffizienz von der Position der kleinen, lokalisierten Quelle gemäß Abbildung 21 am Beispiel von I-125	62
Abbildung 23: Schematische Darstellung der Einflussfaktoren auf die Messunsicherheit.....	64
Abbildung 24: Abstandsabhängigkeit der Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Elektronen und Photonenstrahlung für I-125 (relative Werte)	68
Abbildung 25: Abstandsabhängigkeit der Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Betastrahlung, Elektronen und Photonenstrahlung für Lu-177 (relative Werte).....	68
Abbildung 26: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für I-125 bei Abstand 7 mm.....	69
Abbildung 27: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für Lu-177	70
Abbildung 28: Abhängigkeit der Effizienz von der Position des Messguts unter der Detektorfläche (für I-125).....	71
Abbildung 29: Abhängigkeit der Effizienz von der Position des Messguts unter der Detektorfläche (für Lu-177).....	71
Abbildung 30: Massenschwächungskoeffizient des Iods [NIS 21]	77
Abbildung 31: Aufbau des MCNP-Modells zur Modellierung der Abschirmung durch eine NaI-Schicht	78

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Ergebnisse der Messungen an mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien (Messwerte und berechnete Aktivitätswerte hervorgehoben).....	20
Tabelle 2: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für I-125 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz η	22
Tabelle 3: Fehlerhafte Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für I-125 mit dem für Kontaktmessung geltenden Wert der Effizienz....	22
Tabelle 4: Überblick über die Messunsicherheiten bei der Messung von I-125.....	23
Tabelle 5: Bester Schätzwert und Vertrauensgrenzen für die gammaspektrometrische Messung des Lu-Präparates am 20.08.2021	24
Tabelle 6: Ergebnisse der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien (Messwerte und berechnete Aktivitätswerte hervorgehoben)	26
Tabelle 7: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für Lu-177 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz....	28
Tabelle 8: Fehlerhafte Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für Lu-177 mit dem für Kontaktmessung geltenden Wert der Effizienz.....	29
Tabelle 9: Überblick über die Messunsicherheiten bei der Messung von Lu-177.....	30
Tabelle 10: Bestimmung der verbleibenden Restflüssigkeit in Einwegspritzen	31

Tabelle 11:Empfohlene Werte für den Kompensationsfaktor für Messungen mit Kontaminations- monitor mit Plastiksintillator für verschiedene Arten von Wirknukliden mit und ohne Abschirmung	40
Tabelle 12:Höhe der Einstrahlung durch das primäre Messgut sowie eine benachbarte Quelle neben dem Detektor gemäß Abbildung 20	61
Tabelle 13:Fehlergrenzen für die in den Experimenten genutzten Luftpolsterpipetten „Research plus“ der Fa. Eppendorf nach DIN EN ISO 8655	66
Tabelle 14:Fall 1: Schwächungsfaktor bzw. prozentualer Durchdringungsanteil von Photonen durch NaI-Schichten.....	80
Tabelle 15:Fall 2: Schwächungsfaktor bzw. prozentualer Durchdringungsanteil bei Kontami- nationsschichten unterschiedlicher Dicken.....	80
Tabelle 16: Ergebnisse der Messungen mit Cr-51.....	83

1 Einleitung und Zielsetzung

Das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (*LfULG*) hat die Brenk Systemplanung GmbH (BS) mit der Durchführung eines Forschungsvorhabens „Qualifizierung von Methoden zur Vereinfachung der Freigabeentscheidung in der Nuklearmedizin unter Gewährleistung der Übertragbarkeit auf andere Anwendungsgebiete“ beauftragt. Das Ziel dieses Forschungsvorhabens ist die wissenschaftlich-technische Qualifizierung, bei Bedarf auch Entwicklung von Vorgehensweisen, mit denen über Freigabeanträge von Abfällen aus der Nuklearmedizin im Sinne von §§ 31-42 StrlSchV entschieden werden kann.

Diese Zielsetzung ist vor dem im Folgenden dargestellten Hintergrund zu sehen:

Eine große Zahl von Radiopharmaka enthält nur Radionuklide mit hinreichend kurzen Halbwertszeiten (HWZ), deren Aktivität in wenigen Tagen oder Wochen bis unter die Freigabewerte für die uneingeschränkte Freigabe gem. Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV oder unter die Freigabewerte für die Freigabe zur Beseitigung gem. Anl. 4 Tab. 1 Sp. 8-11 StrlSchV abgeklungen sind. Die Freigabe dieser Stoffe kann daher bei bekannter Ausgangsaktivität gemäß Spezifikation (z. B. Gesamtaktivität pro Anwendung) und einer bekannten Menge an Abfällen (z. B. Rückstände aus einer bestimmten Anzahl von Anwendungen) allein über die Einhaltung einer ausreichend langen Abklingzeit erzielt werden.

Demgegenüber gibt es einige Radiopharmaka, in denen das Wirknuklid zwar ebenfalls eine kurze Halbwertszeit aufweist, in welchen jedoch aufgrund der Herstellung andere Radionuklide enthalten sind (Verunreinigungsnuklide¹), die eine so lange Halbwertszeit (HWZ) aufweisen, dass in einer praktikablen Zeitspanne die Freigabewerte nicht durch Abklinglagerung alleine erreicht werden können. In diesem Fall ist in Abhängigkeit der jeweiligen Verunreinigungsnuklide die Freigabe durch rechnerische Bilanzierung oder messtechnischen Nachweis oder eine Kombination aus beiden Verfahren möglich. Welche Nachweismöglichkeit anwendbar ist, muss dabei für jedes Wirknuklid und ggf. vorliegende Verunreinigungsnuklid im Einzelfall geprüft werden und ist abhängig von der HWZ, der Zerfallsart, Zerfallsenergie und Zerfallshäufigkeit der jeweiligen Verunreinigungsnuklide.

Im aktuellen Vorhaben wird daher auf diejenigen Radiopharmaka fokussiert, für welche das Freigabeverfahren höhere Anforderungen als die bloße Abklinglagerung stellt. Die Alternative, radioaktive Reststoffe aus der Anwendung dieser Radiopharmaka als radioaktiven Abfall an eine Landessammelstelle abzugeben, ist mit hohen Kosten und erheblichem verwaltungstechnischen Aufwand verbunden, was dazu führt, dass diverse, insbesondere kleinere Praxen Therapien mit solchen Radiopharmaka nicht anbieten. Eine solche Entwicklung, die dazu führt, dass Therapien mit bestimmten Radiopharmaka nur noch in großen zentralen Einrichtungen verfügbar wären, obwohl sie aus medizinischer Sicht auch in kleineren Praxen und damit flächendeckend angeboten werden könnten, wäre nicht zum Wohle der Patienten.

Vor diesem Hintergrund wird in diesem dreiteiligen Vorhaben ein Verfahren, speziell für Radiopharmaka mit einem bestimmten Anteil langlebiger Radionuklide Freigabeverfahren entwickelt, das auch kleineren

¹ Der Begriff „Verunreinigungsnuklid“ wird hier allein im radiologischen Sinn verwendet für ein Nuklid, das neben dem eigentlichen Wirknuklid produktionsbedingt vorhanden ist, das aber nicht erwünscht ist. Dieser Begriff impliziert keine „Verunreinigung“ des Radiopharmakons im medizinischen oder hygienischen Sinne.

Anwendern solcher Radiopharmaka erlaubt, eine Freigabe der zugehörigen Reststoffe vorzunehmen statt diese der Entsorgung bei einer Landessammelstelle zuführen zu müssen.

Während das Arbeitspaket (AP) AP 1 des Vorhabens [BS 21A] einer systematischen Bestandsaufnahme der in den nuklearmedizinischen Praxen vorhandenen Messtechnik und der dort üblicherweise zu entsorgenden radioaktiven Reststoffe diente, wurde im AP 2 des Vorhabens [BS 21B] ein optimiertes und rechtskonformes Freigabemessverfahren unter Berücksichtigung der Bedingungen in nuklearmedizinischen Praxen entwickelt. Im Rahmen des abschließenden AP 3 erfolgt nun die Charakterisierung des in AP 3 festgelegten Freigabemessverfahrens.

Der vorliegende Bericht zum AP 3 ist wie folgt gegliedert:

- In Abschnitt 2 wird die Aufgabenstellung des AP 3 im Detail sowie deren Umsetzung erläutert.
- In Abschnitt 3 werden die Messungen an Abfällen, die mit beta-/gammastrahlenden Radionukliden kontaminiert sind, dargestellt. Die praktische Durchführung erfolgte mit I-125 und Lu-177/Lu-177m.
- In Abschnitt 4 werden die Messungen an Abfällen, die mit alphastrahlenden Radionukliden kontaminiert sind, dargestellt. Die praktische Durchführung erfolgte mit Ra-223.
- Abschnitt 5 stellt Handlungsanleitungen zur Freigabe für 3 Fälle dar:
 - Die Messung dient unmittelbar der Aktivitätsbestimmung des beta-/gammastrahlenden Radionuklids, das für die Freigabe bestimmend ist.
 - aus dessen Aktivität die Aktivität eines anderen Radionuklids, das für die Freigabe bestimmend ist, abgeleitet wird.
 - Die Messung dient zur Aktivitätsbestimmung eines alphastrahlenden Radionuklids.
- Abschnitt 6 enthält eine Danksagung.
- Abschnitt 7 umfasst das Literaturverzeichnis.

Der Bericht enthält ferner 5 Anhänge:

- In Anhang A (Abschnitt 8) werden MCNP-Simulationen für die Messungen mit Kontaminationsmonitoren dargestellt, durch welche die im Hauptteil dargestellten Ergebnisse näher untersucht werden.
- In Anhang B (Abschnitt 9) werden Unsicherheitsbetrachtungen für die beiden den Messungen zugrunde gelegten Radionuklide I-125 und Lu-177 durchgeführt, auf welche im Hauptteil Bezug genommen wird.
- In Anhang C (Abschnitt 10) wird der Einfluss einer Selbstabsorption durch das Probematerial untersucht.
- Anhang D (Abschnitt 11) stellt die Messungen an Cr-51 dar, die nicht zum Erfolg geführt haben.
- In Anhang E (Abschnitt 12) ist das Ablaufschema für die Freigabemessungen wiedergegeben.

2 Aufgabenstellung AP 3 und Umsetzung

Der Inhalt des AP 3 umfasst gemäß der Leistungsbeschreibung die folgenden Punkte [LFU 19]:

- *AP 3: Charakterisierung des Freigabemessverfahrens*
- *Das in AP 2 festgelegte Messverfahren ist für die Anwendung zur Freimessung zu charakterisieren. Die Charakterisierung ist zu verifizieren.*
- *Abzuschließen ist das Projekt mit einem Gesamtbericht über die Ergebnisse der drei Arbeitspakete. Zusätzlich ist die Qualifizierung des in den AP 2/3 entwickelten Messverfahrens beizufügen.“*

Unter der Charakterisierung eines Messverfahrens wird dabei verstanden, dass mit den in AP 1 dieses Vorhabens [BS 21A] identifizierten, gebräuchlichen Messgeräten, insbesondere Kontaminationsmonitoren, und unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls sowie ggf. von Spezifikationswerten die Einhaltung von Freigabewerten nachgewiesen werden kann. Die technischen Anforderungen an die korrekte Bedienung des Messgeräts und die korrekte Durchführung der eigentlichen Messungen unter Berücksichtigung der Aktivitätsgehalte des zu messenden Abfalls (des Messguts) sind dabei Bestandteil des Messverfahrens und werden als gegeben vorausgesetzt.

Die im Folgenden beschriebenen konkreten Messverfahren bauen im Wesentlichen auf den in AP 2 dieses Vorhabens [BS 21B] entwickelten generellen Darstellungen für Messungen beta-/gammastrahlender und alphastrahlender Radionuklide auf. In AP 2 wurden einerseits Verfahren dargestellt, die eine Freigabefähigkeit allein auf Basis der Ausgangsaktivität und durch Berechnung der verbleibenden Aktivität als Funktion des radioaktiven Zerfalls nachweisen. Hierzu sind einerseits Freigaben von Material mit Kontamination durch kurzlebige Radionuklide zu rechnen, bei denen die Freigabefähigkeit durch Abklingen für wenige Tage oder Wochen nachgewiesen werden kann. Diese Vorgehensweise wird im medizinischen Bereich seit Jahrzehnten praktiziert und bedarf keiner weiteren Untersuchung. Andererseits fallen in diese Kategorie Freigaben von Material mit Kontamination durch langlebige Radionuklide, die als Verunreinigungsnuklide vorliegen und deren Aktivität rechnerisch ermittelt werden kann. Ein im Bericht zum AP 2 dieses Vorhabens detailliert diskutiertes Beispiel ist Tc-99, welches als Verunreinigungsnuklid in Tc-99m-Generatoren vorliegt. Auf derartige Verfahren, bei denen die Aktivität der für die Freigabe relevanten Radionuklide rein rechnerisch ermittelt werden kann, wird im vorliegenden Bericht zu AP 3 dieses Vorhabens nicht eingegangen. Vielmehr stehen die Verfahren im Vordergrund, die einen direkten oder indirekten messtechnischen Nachweis der Aktivität von längerlebigen Radionukliden erfordern, die als Wirknuklide oder als Verunreinigungsnuklide vorliegen.

Hierzu werden in Abschnitt 3 beispielhafte Messungen für beta-/gammastrahlende Radionuklide und in Abschnitt 4 Messungen an alphastrahlenden Radionukliden beschrieben.

3 Messungen an beta-/gammastrahlenden Radionukliden

3.1.1 Hintergrundinformation

Die Durchführung von Freimessungen an Materialien, die mit einem langlebigen beta- bzw. gammastrahlenden Radionuklid kontaminiert sind, erfolgte im BS-eigenen Kontrollbereich. Zur Darstellung der verschiedenen Vorgehensweisen bzgl. beta-/gammastrahlender Radionuklide insbesondere in Abschnitt 3.3 des Berichts zu Arbeitspaket 2 dieses Vorhabens [BS 21B] wurden die folgenden Radionuklide für die Messungen ausgewählt²:

- I-125 und
- Lu-177m (über Lu-177).

Die Radionuklide wurden dabei – entsprechend der Situation in der nuklearmedizinischen Praxis – in wässriger Lösung von verschiedenen Quellen bezogen, wobei jeweils die Aktivität direkt durch den Hersteller zertifiziert wurde oder aus einer zertifizierten Charge abgeleitet wurde.

Die Übergabe der Radionuklide erfolgte ursprünglich im November und Dezember 2020. Die zu jenem Zeitpunkt jedoch in Folge der Corona-Pandemie in Kraft getretenen Einschränkungen für die Durchführung von Arbeiten in BS-eigenen Räumlichkeiten, insbesondere im Kontrollbereich der BS, verhinderten allerdings die zeitnahe Durchführung der Versuche, die für Dezember 2020 bzw. Januar 2021 geplant waren. Erst mit den Lockerungen im späten Frühjahr 2021 wurde die Durchführung der Versuche daher wieder möglich und die Messungen erfolgten.

Zu diesem Zeitpunkt war die Aktivität der Radionuklide in den wässrigen Lösungen jedoch bereits stark abgeklungen. In einem ersten Versuchsdurchgang wurden daher die Messungen an I-125 mit der noch vorhandenen Restaktivität durchgeführt³, während die Aktivität von Lu-177/Lu-177m erneuert wurde (erneute Bereitstellung von Aktivität im Juli 2021).

Für diese Messungen kommt ausschließlich ein Kontaminationsmonitor zum Einsatz, da in radiologischen Praxen lediglich das Vorliegen dieses Messgeräts vorausgesetzt werden kann, wie in Arbeitspaket 1 dieses Vorhabens [BS 21A] gezeigt wurde. Der daneben im Rahmen des AP 3 stattfindende Einsatz von Labor-Gammaspektrometrie dient lediglich der Verifizierung der vorliegenden Aktivität für die anschließenden Berechnungen zur Freigabefähigkeit.

3.1.2 Zielsetzung, Planung und Durchführung der Messungen

Die Zielsetzung der Messungen mit Kontaminationsmonitor (Typ CoMo 170 bzw. CoMo 300) lässt sich wie folgt zusammenfassen:

- Es wird grundsätzlich nachgewiesen, dass Kontamination mit den genannten Radionukliden auf typischen Verbrauchsmaterialien wie Kunststoffhandschuhe, Zellstofftücher, Nierenschalen aus Pappe usw. sicher bestimmt werden kann.

² Das Radionuklid Cr-51 wurde ebenfalls untersucht. Da die Effizienz des Detektors für dieses Radionuklid jedoch extrem gering ist, führten die Messungen zu keinem verwertbaren Resultat. Sie sind in Anhang D (Abschnitt 11) dargestellt.

³ Das trifft auch auf die Messungen an Cr-51 zu, vgl. Anhang D.

- Hierbei wird die Kontamination dieser Verbrauchsmaterialien so gesteuert, dass sie – auf die Fläche umgerechnet – unterhalb der massenbezogenen Freigabewerte (Werte der spezifischen Aktivität) nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV liegt. Die durchzuführende Messung belegt damit bei Nachweis der Kontamination, dass das gewählte Messverfahren für die Entscheidungsfindung über die Einhaltung von Freigabewerten geeignet ist.
- Durch geeignete Auswahl des Messguts wird nachgewiesen, dass die Freigabewerte unter Berücksichtigung der Mittelungsmasse nach Anl. 8 Teil A Nr. 1 Buchst. c StrlSchV im gesamten Messgut (z. B. Abfallsack, Masse einige kg bis wenige 10 kg) eingehalten sind.

Für die Planung der gezielten Kontamination einzelner Verbrauchsmaterialien wurde wie folgt vorgegangen:

- Für eine typische Masse an Abfall, wie sie bei der einmaligen Anwendung des Radiopharmakons im nuklearmedizinischen Alltag anfällt, wird die maximal zulässige Aktivität aus dem zugehörigen Freigabewert gemäß Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV berechnet.
- Die Fläche der Abfallstücke, aus denen sich diese typische Abfallmasse zusammensetzt, wird konservativ niedrig abgeschätzt. Hieraus wird die mittlere flächenbezogene Kontamination berechnet, die mit dem massenbezogenen Freigabewert kompatibel ist.
- Das Oberflächenansprechvermögen bzw. die Effizienz des Kontaminationsmonitors wird aus den Daten des Herstellers entnommen oder, falls für das betreffende Radionuklid kein Wert hierfür angegeben wird, aus vorliegenden Daten für andere Radionuklide interpoliert.
- Unter Berücksichtigung des Emissionswirkungsgrads der Oberfläche der Abfallstücke wird hieraus die Nettoeffekt-Zählrate des Kontaminationsmonitors berechnet, welche zu der mittleren flächenbezogenen Kontamination, die mit dem massenbezogenen Freigabewert kompatibel ist, gehört.
- Aus der typischen Nulleffekt-Zählrate am Ort der Messung (in diesem Fall der Kontrollbereich von BS) werden die mindestens erforderlichen Messzeiten für Nulleffekt und Bruttoeffekt berechnet, die zur Erzielung einer mit der nachzuweisenden Aktivität kompatiblen Nachweisgrenze notwendig sind.
- Zur Durchführung der gezielten Kontamination einzelner Verbrauchsmaterialien (Abfallstücke) wird aus der bekannten zerfallskorrigierten Aktivität in der vorhandenen Lösung mit dem Radionuklid durch Verdünnung mit Wasser eine Aktivitätskonzentration eingestellt, die bei Verteilung auf dem Abfallstück etwa der gewünschten flächenbezogenen Aktivität entspricht.

Bei der anschließenden Messung wird eine Zählrate ermittelt, die über einen geeigneten Wert der Detektoreffizienz in eine (flächenbezogene) Aktivität auf dem Messgut umgerechnet wird. Hierbei wird eine auf den jeweiligen Abstand und die jeweilige Abschirmung angepasste Effizienz verwendet. Die Anwendung der vom Hersteller angegebenen Effizienz würde hierbei keine korrekten Aktivitätswerte liefern, da diese Effizienz für Kontaktmessungen (geringster Messabstand, keine Abschirmung) angegeben ist. Es erfolgt ferner eine detaillierte Betrachtung der Typ-B-Unsicherheiten, wozu die einzelnen Messunsicherheiten quantifiziert und zur Gesamt-Messunsicherheit unter Einschluss von Typ-A- und Typ-B-Unsicherheiten verrechnet werden.

Um eine möglichst einfache praktische Anwendung bei Freigabemessungen zu ermöglichen, wird aus diesen Ergebnissen ein sog. Kompensationsfaktor bestimmt, der es gestattet, das Messergebnis ohne Kenntnis der Abhängigkeit der Effizienz von Abstand und Abschirmung und der Typ-B-Messunsicherheiten direkt unter Anwendung der vom Hersteller angegebenen Effizienz für ideale Messbedingungen auf eine für die Freigabemessung anwendbarere Aktivität umzurechnen. Die hierbei angewandte, im Sinne von DIN 25457-1 [DIN 18] konservative Kalibrierung macht für die spätere praktische Anwendung die detaillierte Betrachtung von Typ-B-Unsicherheiten bei Routinemessungen überflüssig.

Mögliche Störeinflüsse durch das Vorliegen weiterer Radionuklide in realen Kontaminationssituationen, z. B. bei nicht-wirknuklidreiner Sammlung der Reststoffe, müssen zusätzlich für den Einzelfall, d. h. für das betreffende Radiopharmakon, bewertet werden. Falls diese weiteren Radionuklide vergleichsweise kurze Halbwertszeiten haben, kann der Störeinfluss beispielsweise durch eine geeignete Abklingzeit beseitigt werden.

3.1.3 Versuchsplan

3.1.4 Ablauf Kontamination typischer Verbrauchsmaterialien

Die Kontamination typischer Verbrauchsmaterialien erfolgt in der Weise, dass auf ausgewählte Oberflächen eine Kontamination in der Höhe aufgebracht wird, die zwecks Einhaltung der massenbezogenen Freigabewerte gemäß Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV erkannt werden müsste. Hierbei wird folgende Umrechnung zugrunde gelegt:

- Der massenspezifische Freigabewert für das betreffende Radionuklid wird Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV entnommen.
- Die Gesamtaktivität, die auf einer Charge von Verbrauchsmaterialien (entsprechend einer Anwendung) in Form von Kontamination vorliegen darf, damit der Freigabewert für die uneingeschränkte Freigabe nicht überschritten wird, ergibt sich als Produkt aus dem Freigabewert und der Masse der Charge. Diese Masse liegt typischerweise in der Größenordnung von 50 g bis 70 g (bestehend üblicherweise aus dem Vial, einer Einwegspritze, evtl. einem venösen Zugang, Kanülen, Tupfern, mehreren Paar Einweghandschuhe und einer Einweg-Nierenschale).
Die mittlere flächenbezogene Kontamination, die zulässig ist, damit der Freigabewert für die uneingeschränkte Freigabe nicht überschritten wird, ergibt sich als Quotient der Gesamtaktivität durch die typische Fläche der Verbrauchsmaterialien einer Charge. Diese Fläche beträgt bei zwei Handschuhen mit potenziell beidseitiger Kontamination, einer Nierenschale aus Pappe mit höchstens einseitiger Kontamination und zwei Zellstofftüchern ca. 2.000 cm².
- Die zulässige massenbezogene Aktivität bzgl. des Freigabewerts für die uneingeschränkte Freigabe ergibt sich aus dem Produkt des Freigabewerts nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV und der Masse der Charge. Für die Qualifizierung der Messtechnik wird daher mit einer Feinmesswaage die Masse eines einzelnen Handschuhs bzw. eines Papierhandtuchs ermittelt und über den Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV diejenige Aktivitätsmenge berechnet, bei der ein Handschuh bzw. Papierhandtuch uneingeschränkt freigebbar ist. Diese Aktivitätsmenge wird über die bekannte massenspezifische Aktivität der Aktivitätslösung in eine Flüssigkeitsmenge umgerechnet. Sofern die Aktivitätskonzentration in der Lösung niedrig genug ist, kann die Lösung unverdünnt verwendet werden. Andernfalls wird rechnerisch ein Verdünnungsfaktor bestimmt und in einem separaten Gefäß eine verdünnte Lösung mit bekannter massenspezifischer Aktivität erzeugt. Um eine möglichst hohe Genauigkeit der zur Kontamination verwendeten Flüssigkeitsmenge zu haben, wird die Flüssigkeit mithilfe einer Mikropipette („Eppendorf-Pipette“) auf den Handschuh bzw. das Papierhandtuch aufgebracht.
- Beim Kontaminieren der Handschuhe wird mit der Pipette die die Aktivität tragende Flüssigkeit auf dem Handschuh verteilt, wobei darauf geachtet wird, dass ausreichend Abstand zum Rand der Handschuhfläche gehalten wird, damit sämtliche aufgebrauchte Aktivität auf dem Handschuh verbleibt. Dies entspricht der Situation in der Praxis, bei der sich ein Teil des Radiopharmakons als Kontamination auf der Außenoberfläche der Handschuhe flächig verteilen kann. Bei Papierhandtüchern werden diese wegen der potentiellen Durchdringung beim Aufsaugen der Aktivitätsflüssigkeit zweifach gefaltet, sodass sich vier Schichten Papier übereinander befinden. Die Kontaminationsflüssigkeit wird dann ebenfalls mittels Pipette auf die oberste Papierschicht aufgebracht.

- Nach dem Kontaminationsvorgang verbleiben Handschuhe und Papierhandtücher mehrere Stunden lang in einem Abzug bei eingeschalteter Lüftung, sodass die flüssige Kontamination eintrocknen kann. Bei der Durchführung der Messungen mittels Kontaminationsmonitor wird nur noch auf vollständig trockenen Oberflächen gemessen.

Das Eintrocknen der aktivitätshaltigen Lösung vor Durchführung der Messung führt nicht zu einer weiteren Veränderung der Aktivität, da sowohl das NaI als auch das Lu-177 in der jeweiligen Lösung auskristallisiert (die Kristallisationsenthalpie für NaI in Wasser bei Raumtemperatur ist negativ und somit der Übergang in das Kristallgitter energetisch günstiger als die Sublimation oder Verdampfung; entsprechend ist der Übergang von Lu aus der Lösung in die Metallstruktur energetisch günstiger). Beispielsweise werden auch Proben zur Messung von alpha- oder von betaemittierenden Radionukliden aus Wasserproben durch Eindampfen gewonnen, wobei die Eindampfrückstände die vollständige Aktivität umfassen.

3.1.5 Kontrolle der Messtechnik

Als Messgerät wird ein Kontaminationsmonitor der Firma Nuvia Instruments vom Typ CoMo 170 mit einer Messfläche von 170 cm² benutzt. Das Gerät wurde gewählt, weil davon auszugehen ist, dass vergleichbare Messgeräte in allen radiologischen Arztpraxen vorhanden sind.

Vor Beginn der Messung ist das Messgerät gemäß der hauseigenen Prüfanweisungen eine Qualitätssicherung (QS) durchzuführen. Die QS umfasst insbesondere die folgenden Punkte :

- Zustandskontrolle
- Prüfung der Batteriespannung
- Prüfung der Lichtempfindlichkeit
- Prüfung des optischen/akustischen Alarms
- Nulleffektmessung
- Prüfung des Wirkungsgrades mittels Prüfstrahler

3.1.6 Auswertung der Messungen an flächig ausgebreiteten Verbrauchsmaterialien

3.1.6.1 Umrechnung der Zählrate in die flächenbezogene Aktivität

Die grundsätzliche Beziehung zwischen der flächenbezogenen Aktivität a und der Zählrate der Bruttomesung ist durch die Beziehung (1) gegeben.

$$a = \frac{(r_g - r_0 \cdot \lambda)}{\varepsilon_{D,NV} \cdot \varepsilon_M \cdot f_G} \quad (1)$$

Hierbei bedeuten:

- r_g die Zählrate der Bruttomesung [s^{-1}];
- r_0 die Zählrate der Nulleffektmessung [s^{-1}];
- λ der Faktor zur Berücksichtigung der Variabilität des Nulleffektes als Konsequenz des Einflusses des Messgutes (Abschirmung, natürliche Radioaktivität);
- $\varepsilon_{D,NV}$ das Oberflächenansprechvermögen des Detektors für den Nuklidvektor NV [$cm^2/(s \cdot Bq)$];
- ε_M der Emissionswirkungsgrad des Messgutes [-];
- f_G der Geometriefaktor zur Berücksichtigung der Geometrie des Messgutes (Abstand, Abschirmung) [-];
- w Faktor zur abkürzenden Schreibweise aller Faktoren [-]

Nachfolgend wird auf diese Parameter eingegangen.

Zählrate der Nulleffektmessung r_0

Die Zählrate der Nulleffektmessung wird unmittelbar aus der zuvor durchgeführten Nulleffektmessung übernommen. Eine Korrektur des Nulleffektes findet nicht statt.

Faktor zur Berücksichtigung der Variabilität des Nulleffektes

Im vorliegenden Fall wird $\lambda = 1$ gesetzt, da das Messgut keine natürliche Radioaktivität aufweist und da die Anwesenheit des Messguts nicht zu einer wesentlichen Abschirmung der Hintergrundstrahlung führt. Somit bestehen bei der eigentlichen Messung keine wesentlichen Unterschiede gegenüber der Nulleffektmessung.

Zählrate der Bruttoeffektmessung r_g

Die Zählrate der Bruttoeffektmessung wird unmittelbar aus der Messung am Messgut übernommen.

Emissionswirkungsgrad der Quelle

Der Emissionswirkungsgrad der Quelle (Oberfläche von Latex- bzw. Nitril-Handschuhen und Papiertüchern) ϵ_M wird durch das Messgut bestimmt.

Oberflächenansprechvermögen $\epsilon_{D,NV}$ des Detektors

Das Oberflächenansprechvermögen $\epsilon_{D,NV}$ des Detektors entspricht dem Quotienten aus der Nettozählrate und der sie verursachenden flächenbezogenen Aktivität des Prüfstrahlers bzw. der Probe. Die zugehörigen Werte werden vom Hersteller des Messgeräts für eine große Zahl von Radionukliden angegeben⁴. Da im vorliegenden Fall jeweils nur ein Radionuklid vorliegt, das den Messeffekt verursacht, besteht der zugehörige Nuklidvektor nur aus diesem jeweils einem Radionuklid.

Alle Werte beziehen sich auf Messungen in Kontakt, d. h. auf den kleinsten möglichen Abstand zwischen Messfläche des Detektors und Messgut. Mit steigendem Abstand verringert sich die Effizienz des Detektors jedoch deutlich (wobei dieser Effekt insbesondere von der Energie der nachzuweisenden Elektronen abhängt, während der Messeffekt durch Photonen weit weniger abstandsabhängig ist). Auf die Abstandsabhängigkeit der Effizienz und die Abhängigkeit der Effizienz von einer etwaigen Abschirmung wird anhand einer Monte-Carlo-Simulationen vertieft in Anhang A (Abschnitt 0) eingegangen. Im vorliegenden Zusammenhang empfiehlt es sich, den Wert der Effizienz für die unabgeschirmte Kontaktmessung gemäß Herstellerangabe durchgängig zu verwenden und die Korrektur der Abstandsabhängigkeit und des Einflusses einer abschirmenden Schicht für die Interpretation der gemessenen Zählrate in einer konkreten Messsituation mittels des Geometriefaktors f_G (s. u.) durchzuführen.

Geometriefaktor f_G

Der Geometriefaktor f_G wird im vorliegenden Zusammenhang verwendet, um zwei Einflussfaktoren zu berücksichtigen:

- die erhebliche Abhängigkeit der Zählrate vom Abstand zwischen Messgut und Detektoroberfläche (insbesondere für Elektronen niedriger und mittlerer Energien), wie in Abschnitt 8.1.4 von Anhang A dargestellt, und

⁴ Falls für ein bestimmtes Radionuklid kein Wert vom Hersteller angegeben ist, kann ein geeigneter Wert durch Interpolation zwischen vorliegenden Werten ermittelt werden, wobei als Parameter für die Interpolation die Beta-Energien mit zugehörigen Zerfallswahrscheinlichkeiten angewendet werden.

- die Abhängigkeit der Zählrate von abschirmendem Material (z. B. einer Latexlage eines Handschuhs), das sich zwischen der Kontamination und der Detektoroberfläche befindet, wie in Abschnitt 8.1.5 von Anhang A dargestellt wird.

Alle Angaben zum Abstand zwischen Detektor und Messgut beziehen sich auf den wahren Abstand zwischen dem Detektor und der die Aktivität tragenden Messgutoberfläche. Auf den Einfluss der Bauform des Geräts, bei der sich der Detektor ca. 2 mm tief hinter der Gehäusekante befindet, wird in Abschnitt 8.1.4 von Anhang A eingegangen. Im vorliegenden Fall wird das Gehäuse des Detektors in einem Abstand von ca. 10 mm von der Tischplatte gehalten. Handschuhe und Papiertücher können zwar flach auf einer Tischoberfläche ausgebreitet werden, werfen dabei aber unweigerlich Falten. Der mittlere Abstand zwischen Gehäuseunterseite (Gitter unter der Folie) und Messgut – in der gewählten und auch später vorgeschlagenen Messanordnung – liegt bei ca. 5 mm und kann durch Faltenwurf zwischen 8 mm und 2 mm variieren. Zu diesen Abständen ist noch die Distanz von ca. 2 mm zwischen Gehäuseunterseite und dem eigentlichen Detektor zu addieren. Im Mittel muss somit eine Korrektur der für die Kontaktmessung geltenden Effizienz auf einen realen Abstand von im Mittel 7 mm stattfinden; bei Messungen mit einer abschirmenden Schicht muss zusätzlich noch die Korrektur der Effizienz bzgl. der Abschirmung entsprechender Dicke erfolgen.

Formel (1) kann weiterhin nach der Zählrate r_g der Bruttomessung umgestellt werden, um die zu einer nachzuweisenden flächenbezogenen Aktivität zugehörige Zählrate zu ermitteln.

3.1.6.2 Interpretation der Formel (1) mittels eines „Kompensationsfaktors“ für die Anwendung in der Freigabe

Die in Abschnitt 3.1.6.1 dargestellte Interpretation der Messung unter Anwendung der detaillierten Abstandsabhängigkeit, der detaillierten Modellierung des Einflusses der Abschirmung (beides im Geometriefaktor f_G) in Formel (1) ist für die Freigabepraxis nicht tauglich, da der Anwender die notwendigen Korrekturen nicht selbst durchführen und somit deren Einfluss auf den Geometriefaktor f_G nicht ohne weiteres realistisch ermitteln kann. Selbst die detaillierte Modellierung in Anhang A kann die Beobachtungen bei den Messungen nicht vollständig beschreiben, da hierzu die genaue Kenntnis einiger geräte spezifischer Daten (u.a. exakte Geometrien und Algorithmen für die Auswertung der Messungen, wie in Anhang A erläutert wird) notwendig wäre. Um eine möglichst simple Anwendung in der Praxis zu ermöglichen, wird die Formel gemäß (2) vereinfacht. Hier wird neben der Brutto- und der Nulleffektzählrate nur noch die effektive Effizienz ε_{eff} verwendet, die dem Wert bei Kontaktmessung entspricht. Alle Korrekturen durch Abstand und Abschirmung werden durch einen Kompensationsfaktor beschrieben. Für diesen wird ein fester Wert gemäß der Darstellung in Abschnitt 5.1.1 hergeleitet.

Für den Kompensationsfaktor wird in Analogie zur Wahl der Formelzeichen gem. DIN 25457-1 die Bezeichnung f_k verwendet.

$$a = f_k \frac{r_g - r_0}{\varepsilon_{eff}} \quad (2)$$

3.1.6.3 Nachweisgrenzen

Die Nachweisgrenze der Zählrate bei stationärer Impulsratenmessung ergibt sich gemäß Formel (3) wie folgt:

$$r_{NWG} = \sqrt[3,3]{\left(\frac{1}{\tau_0} FVDV + \frac{1}{\tau_g}\right)} \quad (3)$$

wobei

- τ_0 *Ansprechzeit für die Nulleffektmessung bei Impulsratenmessgeräten [s],*
 τ_g *Ansprechzeit für die Bruttoeffektmessung bei Impulsratenmessgeräten [s].*

Die Nachweisgrenze der Zählrate muss die dem Freigabewert entsprechende Zählrate gemäß Formel (1) unterschreiten, damit das Messverfahren für den Nachweis der Unterschreitung des Freigabewerts geeignet ist. Die Ansprechzeiten für die Messung des Nulleffekts und des Bruttoeffekts sind entsprechend zu wählen. τ_{min} als minimale Ansprechzeit in s ist bei der Entscheidungsmessung für $\tau_0 = \tau_g = \tau_{min}$ zu berechnen aus Formel (4):

$$\tau_{min} = \frac{22 \cdot r_0}{\alpha_{FGW}^2 \cdot \varepsilon_{D,NV}^2 \cdot \varepsilon_M^2 \cdot f_G^2} \quad (4)$$

Als Messzeit ist mindestens das 1,3-Fache von τ_{min} zu wählen.

3.1.7 Bestimmung des Restgehalts an Flüssigkeit in Spritzen

Der direkte messtechnische Nachweis von betastrahlenden Radionukliden in der Restflüssigkeit, die in der Düse von Einwegspritzen verbleibt, ist nicht möglich. Diese Aktivität kann aber indirekt aus dem Volumen bzw. der Masse bestimmt werden, welche dort nach der Anwendung zwangsläufig verbleibt. Da diese Aktivitätsmenge in den späteren Auswertungen der Aktivität in diesem Abschnitt berücksichtigt wird, erfolgt an dieser Stelle eine Abschätzung der in der Düse von Einwegspritzen verbleibenden Flüssigkeitsmenge. Da nur die Masse, nicht aber die Aktivität der Flüssigkeit gemessen wird, erfolgen die hier beschriebenen Messungen mit Wasser. Im Rahmen der Genauigkeit der Angaben ist die Annahme, dass sowohl das für die Messungen verwendete Wasser als auch die wässrigen Lösungen mit dem jeweiligen Radiopharmakon eine Dichte von 1 g/cm³ haben, gerechtfertigt.

Zur Abschätzung der Masse erfolgt eine Wägung der Spritze im ungebrauchten Zustand und nach dem Aufziehen und Ausdrücken der Flüssigkeit, wodurch der gebrauchte Zustand simuliert wird. Die Differenz der Ergebnisse beider Wägungen ergibt die Masse der in der Spritze zurückbleibenden Flüssigkeit (im realen Fall des Radiopharmakons). Die darin enthaltene Gesamtaktivität wird aus der volumenbezogenen Aktivität des Radiopharmakons unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls bestimmt.

Für die Durchführung der Messungen der Restmasse der Flüssigkeit wird wie folgt vorgegangen:

- Wägung der leeren, trockenen Spritze auf der Feinwaage
- Aufziehen der Spritze mit Leitungswasser, anschließend vollständige Entleerung
- Wägung der entleerten Spritze auf der Feinwaage

- Bestimmung der Masse der Restflüssigkeit durch Differenzbildung
- Umrechnung in eine Restaktivität für verschiedene Abklingzeiträume

Die Ergebnisse werden in Abschnitt 3.1.18 dargestellt.

3.1.8 Durchführung der Versuche mit I-125

3.1.9 Grundlagen zur Freigabe von mit I-125 kontaminierten Reststoffen

In Ergänzung zu der in Abschnitt 3.1.3 dargestellten allgemeinen Vorgehensweise für die Durchführung von Messungen an Verbrauchsmaterialien gelten für I-125 die folgenden Randbedingungen:

- massenspezifischer Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV: 100 Bq/g
- flächenspezifischer Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 5 StrlSchV: 10 Bq/cm²
- Oberflächenansprechvermögen bzw. Detektorwirkungsgrad für CoMo 170: 12 %

Zum Nachweis der Einhaltung des massenbezogenen Freigabewerts darf in einer Abfallcharge einer Masse von beispielweise 70 g eine Aktivität von 7.000 Bq vorliegen. Im Hinblick auf flächenbezogene Messungen kann dieser Wert der Gesamtaktivität wie folgt interpretiert werden:

- Sofern diese Kontamination rein oberflächlich auf den Verbrauchsmaterialien vorliegt, ergibt sich bei einer typischen Fläche der Verbrauchsmaterialien einer Anwendung (insbesondere mehreren Paar Einweghandschuhe, Tupfern und einer Einweg-Nierenschale) von 2.000 cm² eine mittlere flächenbezogene Aktivität von 3,5 Bq/cm², die nachgewiesen werden muss, damit in der Gesamtcharge der massenbezogene Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV nicht überschritten wird.
- Dieser Wert reduziert sich, wenn ein Teil der Kontamination in Form von Restflüssigkeiten z. B. in einem Vial vorliegt. Die in einer solchen Restflüssigkeitsmenge enthaltene Aktivität kann aus dem (optisch abschätzbaren) Volumen und der bekannten, darin enthaltenen Aktivitätskonzentration abgeschätzt werden.

3.1.10 Kontamination der Verbrauchsmaterialien

Im Rahmen der Versuche wurden zwei Einweghandschuhe aus Latex/Nitril sowie zwei Papiertaschentücher gezielt mit Iod-125 in einer wässrigen Lösung kontaminiert. Die applizierte Aktivität wurde mit Hilfe des Zerfallsgesetzes aus der von der PTB gemessenen Referenz-Ausgangsaktivität bestimmt. Diese Referenzaktivität wurde im Zertifikat der PTB mit $(24,0 \pm 0,6)$ kBq/g am 15.09.2020, 0:00 Uhr angegeben.

Die Versuchsdurchführung fand im hauseigenen Kontrollbereich statt. Die Versuchsdurchführung war dabei wie folgt:

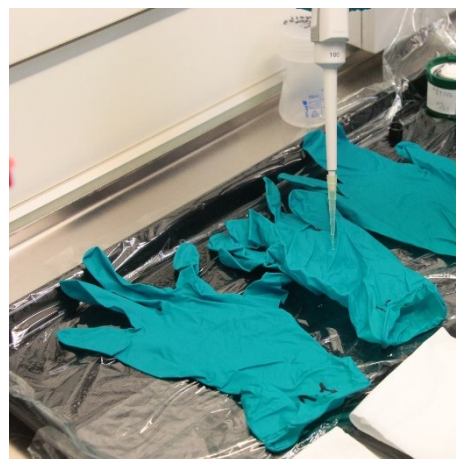
- Arbeitsfläche zum Schutz vor Kontamination mit Folie bedecken
- Messung des Nulleffekts (Messzeit 120 s)
- Beschriften und Ausbreiten der Testmaterialien auf der Arbeitsfläche
- Gezielte Kontamination des Testmaterials mittels Pipette
- Einweghandschuhe: << 1 ml (jeweils)
- Papiertücher: << 1 ml (jeweils)
- Naturtrocknung der Flüssigkeit für mehrere Stunden im Abzug
- Statische Messung der Impulse mittels CoMo 170 (Messdauer 20 s)
- Wenden der Testmaterialien um 180° (kontaminierte Seite nach unten)
- Erneute Messung mittels CoMo 170

In Abbildung 1 ist die beschriebene Vorgehensweise noch einmal bebildert. Die sichere Versuchsdurchführung wurde durch das Tragen von persönlicher Schutzausrüstung und das Arbeiten unter dem eingeschalteten Abzug gewährleistet.

Bei der applizierten Aktivität wurde ein Kompromiss zwischen der maximal erlaubten Gesamtaktivität, um die massebezogenen Freigabewerte nicht zu überschreiten (siehe 3.1.9), und einer für den Arztbetrieb realistischen Menge an Restflüssigkeit gewählt.



a) vorbereitetes Verbrauchsmaterial



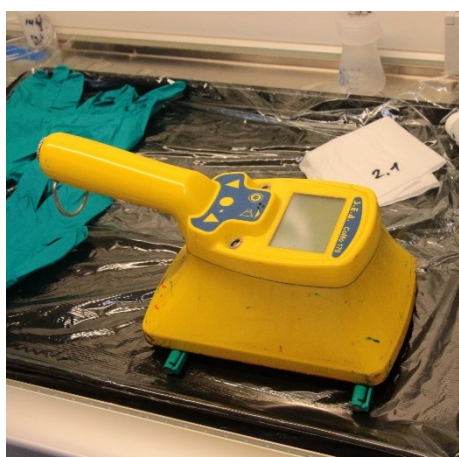
b) gezielte Kontamination per Pipette



c) flüssiges Präparat während des Trocknens



d) Detailansicht Abstandshalter



e) Messung mit dem CoMo 170



f) Detailansicht Abstand Messgerät - Präparat

Abbildung 1: Ablauf der Versuchsvorbereitung und -durchführung für die mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien (von den drei gezeigten Handschuhen wurden zwei in die Messungen einbezogen)

Um für die Messungen an allen vier Messobjekten einen gleichmäßigen Abstand zwischen Testmaterial und Messgerät sicherzustellen und eine eventuelle Kontamination des Messgeräts durch Berühren des Testmaterials zu vermeiden, werden zwei handelsübliche Stifte mit dem Durchmesser 10 mm als Abstandhalter benutzt (siehe Abbildung 1, Bild d) und vgl. die Ausführungen in Abschnitt 3.1.6 zu den Abständen). Hierdurch wird das Gehäuse des Messgeräts auf einen Abstand von 10 mm zur Tischplatte gebracht, während der Detektor selbst ca. 2 mm oberhalb der Gehäusekante liegt.

3.1.11 Durchführung und Auswertung der Messung

3.1.11.1 Messergebnisse in Form von Zählraten

Tabelle 1 zeigt die Messergebnisse der Messungen an mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien. Die applizierte Aktivität berechnet sich aus der gemessenen Aktivität und der Halbwertszeit von 59,4 Tagen.

Tabelle 1: Ergebnisse der Messungen an mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien (Messwerte und berechnete Aktivitätswerte hervorgehoben)

	Handschuh 1	Handschuh 2	Papiertuch 1	Papiertuch 2
Masse Testobjekt [g]	6,655	6,526	1,739	1,744
Resultierender Freigabewert [Bq]	666	653	174	174
Applizierte Menge [ml]	0,5	0,5	0,2	0,2
Applizierte Aktivität [Bq]	416	416	166	166
Messzeit Nulleffekt [s]	120	120	120	120
Nulleffekt [ips]	10,9	10,9	10,9	10,9
Messzeit Entscheidungsmessung [s]	20	20	20	20
Bruttoeffekt Vorderseite (VS) [ips]	36,1	32,6	23,3	21,2
Bruttoeffekt Rückseite (RS) [ips]	34,5	32,1	24,4	20,9

3.1.11.2 Vorgehensweise zur Umrechnung der Zählraten in Aktivitäten

Für die Umrechnung der Nettoeffekt-Zählrate [ips] in eine Aktivität [Bq] wird von der vom Hersteller angegebenen Effizienz von 12 % für I-125 ausgegangen. Dieser Wert gilt bei Kontaktmessung und muss auf den Abstand von im Mittel 7 mm zwischen Messgut und Detektorfläche korrigiert werden. Abbildung 2 zeigt hierzu den Verlauf der relativen Effizienz) als Funktion des Abstands (ohne Abschirmmaterial)⁵. Die Darstellung erfolgt in relativen Werten (Kontakt = 100 %, was der Herstellerangabe von 12 % entspricht). Der gesuchte Wert der Effizienz (Produkt aus Herstellereffizienz und relativer Effizienz aus Abbildung 2 ergibt sich zu 4,8 % ohne Abschirmung. Allerdings zeigt Abbildung 3, die den Verlauf der relativen Effizienz bei 7 mm Abstand als Funktion der Dicke der Abschirmschicht aus leichtem Material darstellt, dass die relative Effizienz bereits bei geringsten Dicke von wenigen µm auf einen danach weitgehend konstanten Wert abfällt. Der extrem flache Verlauf der Kurve wird in Abschnitt 9.1.10 von Anhang B diskutiert. Die

⁵ Die relative Effizienzkurve wurde im Rahmen einer Monte-Carlo-Simulation für einen idealisierten Oberflächenkontaminationsmonitor mit technischen Eigenschaften analog zum verwendeten CoMo 170 ermittelt. Siehe hierzu Anhang A (Abschnitt 8.1.4) und Anhang B (Abschnitt 9.1.7)

Ermittlung der Effizienz bei einem gegebenen Abstand und einer gegebenen Abschirmung auf Basis von Abbildung 3 muss im vorliegenden Fall für eine Abschirmdicke 200 μm erfolgen. Die Abschirmung reduziert die Effizienz auf 53 % relativ zum Wert bei Kontaktmessung, und man erhält aus der ursprünglichen Effizienz 12 % auf diese Weise 6,4 %. Dieser Wert wird auch für die Vorderseitenmessung angewendet.

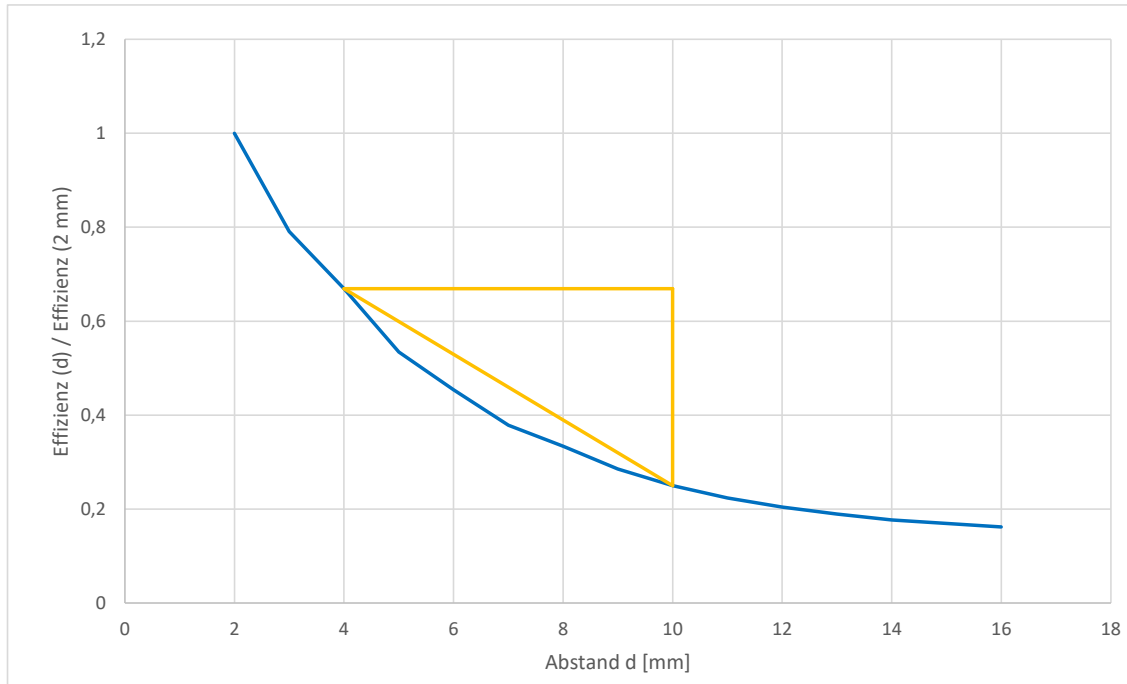


Abbildung 2: Abstandsabhängigkeit der relativen Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Elektronen und Photonenstrahlung für I-125 (relative Werte, Abschirmdicke 0 μm)

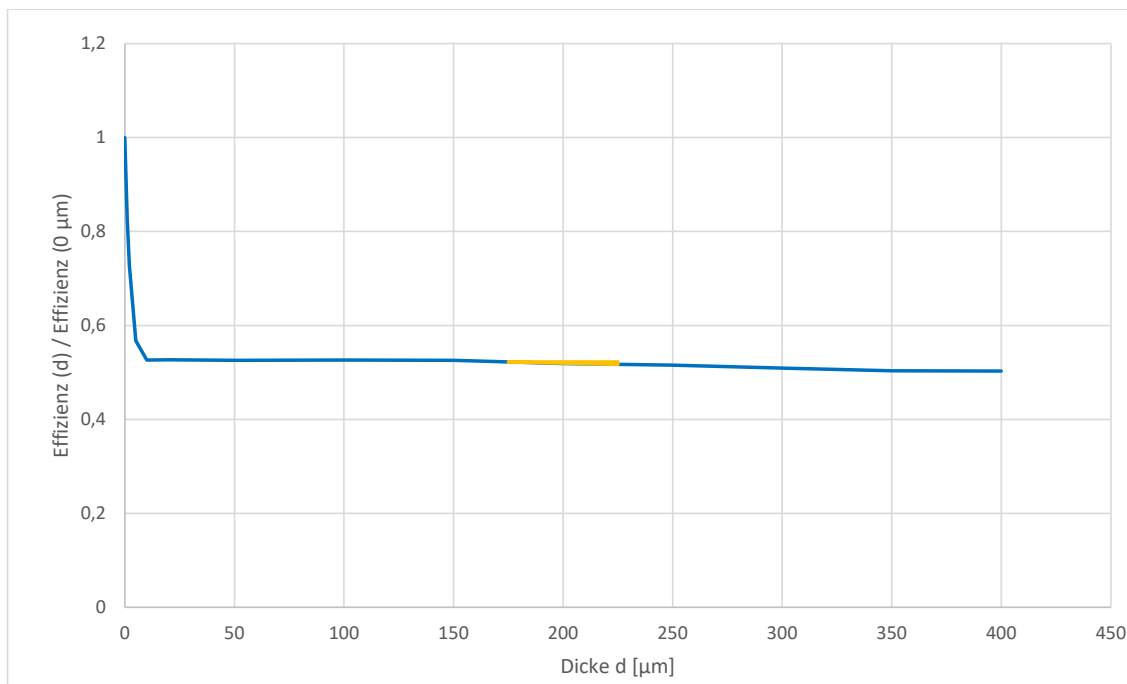


Abbildung 3: Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für I-125 (relative Werte) (für Abstand 7 mm)

Mit den angegebenen Werten für die Effizienz berechnen sich aus den Zählraten gem. Tabelle 2 die in Tabelle 2 angegebenen Aktivitäten als Messergebnisse. Auf die hier bereits mit angegebenen Messunsicherheiten wird im folgenden Abschnitt 3.1.11.3 eingegangen.

Tabelle 2: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für I-125 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz η

	Applizierte Aktivität [Bq]	Messergebnis Vorderseite [Bq]	Messergebnis Rückseite [Bq]
Effizienz η		6,4%	6,4%
Handschuh 1	416 Bq \pm 25	371 \pm 185	396 \pm 197
Handschuh 2	416 Bq \pm 25	341 \pm 170	333 \pm 166
Papiertuch 1	166 Bq \pm 7	195 \pm 98	212 \pm 106
Papiertuch 2	166 Bq \pm 7	162 \pm 82	157 \pm 0

Diese Messergebnisse lassen sich wie folgt interpretieren:

- Der Ansatz der korrigierten Effizienz von 6,4 % für die Vorderseitenmessung führt zu einer leichten Unterschätzung der applizierten Aktivität auf den Handschuhen um ca. 10 % bis 20 %, während sich für die Papiertücher Werte ergeben, die eine Überschätzung bis 30 % ergeben.
- Der Ansatz der korrigierten Effizienz von 6,4 % für die Rückseitenmessung führt zu einer leichten Unterschätzung der applizierten Aktivität auf den Handschuhen um ca. 10 % bis 20 %, während sich für die Papiertücher Werte ergeben, die eine leichte Überschätzung bis 20 % ergeben.

Wäre bei der Auswertung in fehlerhafter Anwendung ausschließlich der vom Hersteller genannte, für ungeschirmte Kontaktmessungen gültige Wert der Effizienz angewendet worden, hätten sich die in Tabelle 3 gezeigten Werte für die Aktivität ergeben. Wegen des viel zu hoch angesetzten Wertes der Effizienz werden hierbei die Werte der applizierten Aktivität um bis zu ca. 50 % unterschätzt.

Tabelle 3: Fehlerhafte Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für I-125 mit dem für Kontaktmessung geltenden Wert der Effizienz

	Applizierte Aktivität [Bq]	Messergebnis Vorderseite [Bq]	Messergebnis Rückseite [Bq]
angesetzte Effizienz η		12 %	12 %
Handschuh 1	416 Bq \pm 25	210	197
Handschuh 2	416 Bq \pm 25	181	177
Papiertuch 1	166 Bq \pm 7	103	113
Papiertuch 2	166 Bq \pm 7	86	83

Der Vergleich der in beiden Tabellen (Tabelle 3 und Tabelle 2) angegebenen Ergebnisse führt auf den Faktor, mit dem der Einfluss von Geometrie und Abschirmung beschrieben wird (vgl. f_G in Abschnitt 3.1.6.1 bzw. f_K in Abschnitt 3.1.6.2). Auf den jeweils abdeckend zu wählenden Wert wird in Abschnitt 5.1.1 im Zusammenhang eingegangen.

3.1.11.3 Messunsicherheiten

Die bei den hier durchgeführten Messungen relevanten Arten von Typ-B-Messunsicherheiten sind aufgrund ihrer Gleichartigkeit für die Versuche mit I-125 und Lu-177 in Anhang B (Abschnitt 9) ausführlich dargestellt. Dort ist auch die gemeinsame Behandlung von Typ-B-Messunsicherheiten, die durch verschiedene Messparameter verursacht werden, beschrieben. An dieser Stelle werden daher die Unsicherheiten lediglich zusammengestellt. Tabelle 4 gibt hierzu einen Überblick.

Tabelle 4: Überblick über die Messunsicherheiten bei der Messung von I-125

Einflussgröße	Rel. Unsicherheit	Quelle
Aktivitätsmenge	2,5 %	PTB-Zertifikat
Zerfallskorrektur	-	Phys. Gesetzmäßigkeit
Pipettenfehler	1,1 % - vgl. Abschnitt 9.1.5, Anh. B	Nach DIN EN ISO 8655
Abstand Detektor-Messgut	46 %, vgl. Abbildung 2	MCNP-Simulationen, Anh. A
Abschirmung durch Messgut	0,5 %, vgl. Abbildung 3	MCNP-Simulationen, Anh. A
Umgebungseinstrahlung	~0, vgl. Tabelle 12	MCNP-Simulationen, Anh. A
Position Messgut unter Detektor	ca. 10 %, vgl. Abbildung 22	MCNP-Simulationen, Anh. A
Detektorwirkungsgrad	15 %	Herstellerangaben
Zählrate	3,7 % - 4,9 %	DIN 25457-1
Nulleffektmessung	2,8 %	DIN 25457-1

Die vollständige Vorgehensweise ist in Abschnitt 9.1.15 von Anhang B beschrieben. Mit diesem Ansatz werden die Unsicherheiten zu den Aktivitäten in Tabelle 2 berechnet.

3.1.11.4 Eignung des Verfahrens für die Freimessung

Damit ein Freimessverfahren als geeignet angesehen werden kann, muss die Nachweisgrenze $r^{\#}$ kleiner sein als der Freigabewert. Die Nachweisgrenze in Ips berechnet sich (für die hier gewählte Vorgehensweise der Kalibrierung) wie in DIN 25457-1 Beiblatt 1 nach Formel (5) zu

$$r^{\#} = (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{\tau_0}{2} \cdot \left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_g} \right)} \quad (5)$$

Bezogen auf die Versuche mit I-125 wurde eine Untergrundzählrate $\tau_0 = 10,9 \text{ s}^{-1}$ gemessen und als Nulleffektmesszeit $\tau_0 = 120 \text{ s}$ und als Messzeit für die Entscheidungsmessung $\tau_g = 20 \text{ s}$ gewählt. Die statistischen Vorfaktoren werden mit $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1,65$ angesetzt. Hierdurch ergibt sich für die Versuche mit I-125 eine Impulsraten-Nachweisgrenze von 3,86 ips. Umgerechnet mit einer Detektoreffizienz von 12 % entspricht dies einer der Nachweisgrenze $r^{\#}$ entsprechenden Aktivität von 32,2 Bq.

Die Masse der Handschuhe bzw. Papiertücher beläuft sich auf ca. 6,6 g bzw. 1,7 g. Bei Bezug der Nachweisgrenze auf diese Massen ergibt sich eine nachweisbare massenspezifische Aktivität der Handschuhe von 5 Bq/g und für Papierhandtücher von 19 Bq/g. Diese Werte liegen deutlich unterhalb des massenbezogenen Freigabewertes für I-125 von 100 Bq/g gem. Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV, sodass das Messverfahren als geeignet anzusehen ist.

3.1.12 Durchführung der Versuche mit Lu-177m

3.1.13 Grundlagen zur Freigabe von mit Lu-177m kontaminierten Reststoffen

In Ergänzung zu der in Abschnitt 3.1.3 dargestellten allgemeinen Vorgehensweise für die Durchführung von Messungen an Verbrauchsmaterialien gelten für Lu-177m die folgenden Randbedingungen:

- massenbezogener Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV: 0,1 Bq/g
- flächenbezogener Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 5 StrlSchV: nicht existent

Zum Nachweis der Einhaltung des massenbezogenen Freigabewerts darf in einer Abfallcharge einer Masse von 70 g eine Aktivität von 7 Bq vorliegen. Da der direkte Nachweis einer solch niedrigen Gesamtaktivität mittels Messungen mit Kontaminationsmonitor nicht möglich ist, erfolgt der Nachweis von Lu-177m durch eine Kombination aus Messung und Berechnung. Wie detailliert im Bericht zu Arbeitspaket 2 [BS 21B] dieses Vorhabens beschrieben, wird Lu-177 mittels Kontaminationsmonitor gemessen und über das Isotopenverhältnis von Lu-177 und Lu-177m rechnerisch auf den Lu-177m-Gehalt geschlossen. Das Oberflächenansprechvermögen bzw. der Detektorwirkungsgrad für Lu-177 eines Kontaminationsmonitors vom Typ CoMo 170 beträgt 35 %.

3.1.14 Eingangsmessung des Lu-Präparates

Das Lu-Präparat wurde vom Universitätsklinikum Aachen zur Verfügung gestellt. Für die übergebene Charge lagen folgende Daten vor: Zum Verabreichungsdatum am 27.07.2021 betrug die Referenzaktivität von Lu-177 laut Hersteller $7,40 \cdot 10^9$ Bq bei einer Flüssigkeitsmenge von 23 ml. Eine weiterführende Angabe zur Messunsicherheit der Aktivitätsmenge seitens des Herstellers konnte nicht übergeben werden, sodass bei allen weiterführenden Berechnungen von der Referenzaktivität ausgegangen wurde.

Für die Anwendung am Patienten als Infusion wird das vom Hersteller abgefüllte Vial stets mit 500 ml Kochsalzlösung verdünnt, sodass sich in diesem Fall eine volumenspezifische Aktivität von Lu-177 von $1,41 \cdot 10^7$ Bq/ml einstellte ($7,40 \cdot 10^9$ Bq in 523 ml). Der max. Anteil von Lu-177m lag zu diesem Zeitpunkt bei ca. 0,0035 % ($3,5 \cdot 10^{-5}$).

Zum Zeitpunkt der Übergabe an BS am 20.08.2021 lag nach einer zu Transportzwecken nochmaligen Verdünnung um den Faktor 1:4,5 eine volumenspezifische Aktivität von Lu-177 von $2,07 \cdot 10^5$ Bq/ml vor. Diese Aktivität war in einer Flüssigkeitsmenge von 0,4 ml enthalten, sodass die rechnerische Gesamtaktivität von Lu-177 $8,28 \cdot 10^4$ Bq betrug.

An der übergebenen Charge wurde eine Eingangsmessung mit einem BS-eigenen Labor-Gammaspektrometer durchgeführt, um die Aktivität zu verifizieren und das Aktivitätsverhältnis der beiden Lu-Isotope möglichst genau zu bestimmen. Die Messzeit betrug 43.200 s bzw. 12 h. Tabelle 5 zeigt die Ergebnisse zum Zeitpunkt der Übergabe an BS am 20.08.2021.

Tabelle 5: Bester Schätzwert und Vertrauensgrenzen für die gammaspektrometrische Messung des Lu-Präparates am 20.08.2021

Isotop	Bester Schätzwert [Bq]	Vertrauensgrenzen [Bq]	EKG [Bq]	NWG [Bq]
Lu-177	$8,214 \cdot 10^4 \pm 8,304 \cdot 10^3$	$6,586 \cdot 10^4 - 9,841 \cdot 10^4$	8,013	$1,658 \cdot 10^1$
Lu-177m	$3,731 \cdot 10^1 \pm 3,759$	$2,994 \cdot 10^1 - 4,467 \cdot 10^1$	$6,476 \cdot 10^1$	$1,340 \cdot 10^2$

Das Messergebnis gemäß Tabelle 5 für Lu-177 bestätigt die aus Zerfall und Verdünnung berechnete Aktivitätsangabe von $8,28 \cdot 10^4$ Bq an Lu-177 am 20.08.2021 sehr gut. Der Tabelle ist ferner zu entnehmen,

dass der Messwert für die Aktivität von Lu-177m unterhalb der Erkennungsgrenze liegt. Trotz der langen Messzeit konnte somit kein gültiger Messwert für die Aktivität von Lu-177m ermittelt werden. Für die folgende Auswertung wird daher der Wert der Erkennungsgrenze angesetzt.

Exakt eine Woche nach der Gammaskpektrometer-Messung wurden am 27.08.2021 die Messungen mit Kontaminationsmonitor durchgeführt. Unter Berücksichtigung der Halbwertszeiten belief sich die Gesamtaktivität von Lu-177 auf $3,97 \cdot 10^4$ Bq. Für Lu-177m wird der Wert der EKG von 65 Bq verwendet, da dies die kleinste bei der Messung bestimmbare Aktivität darstellt. Der Anteil der Aktivität von Lu-177m an der Aktivität von Lu-177 lag somit bei weniger als 0,08 %.

Anmerkung: Die hier durchgeführte Eingangsmessung des Präparats ist nicht Bestandteil des Freigabeverfahrens, sondern diente der Kontrolle der Spezifikation. In der praktischen Durchführung der Freigabemessung wird ausschließlich der Anteil der Aktivität von Lu-177m an derjenigen von Lu-177 verwendet, der sich aus der Spezifikation des Herstellers ergibt.

3.1.15 Kontamination der Verbrauchsmaterialien

Bei der Durchführung der Versuche wurde wie in Abschnitt 3.1.10 beschrieben vorgegangen. Es wurde daher der gleiche Messaufbau sowie die gleichen Messzeiten (20 s Messzeit für den Bruttoeffekt und 120 s für den Nulleffekt) verwendet. Insgesamt wurden die Versuche an folgenden Testobjekten durchgeführt:

- 3 Handschuhe, Kontamination mit je 6,5 µl, entspr. 645 Bq Lu-177,
- 2 Papiertücher, Kontamination mit je 1,5 µl, entspr. 149 Bq Lu-177.

Die kontaminierten Verbrauchsmaterialien und die Messungen zeigt Abbildung 4. Die übrigen Abläufe sind den in Abschnitt 3.1.10 dargestellten vergleichbar.

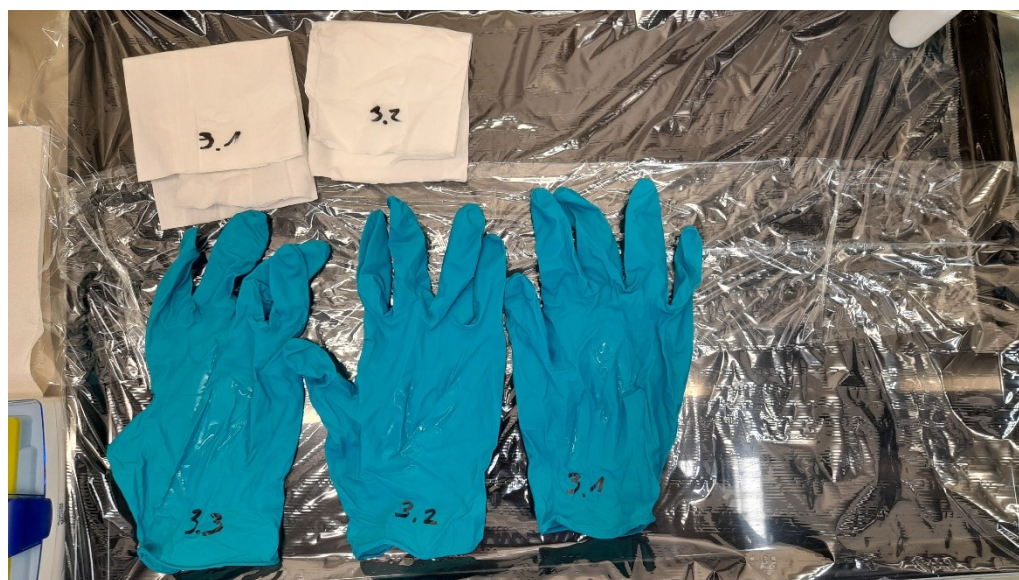


Abbildung 4: Mit Lu-177/Lu-177m kontaminierte Verbrauchsmaterialien und Messungen

3.1.16 Durchführung und Auswertung der Messung

3.1.16.1 Messergebnisse in Form von Zählraten

Tabelle 6 zeigt die Messergebnisse der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien. Die applizierte Aktivität von Lu-177 berechnet sich aus der gemessenen Aktivität und der Halbwertszeit von 6,7 Tagen.

Tabelle 6: Ergebnisse der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien (Messwerte und berechnete Aktivitätswerte hervorgehoben)

	Handschuh 1	Handschuh 2	Handschuh 3	Papier-tuch 1	Papier-tuch 2
Masse Testobjekt [g]	6,525	6,590	6,556	1,730	1,783
Applizierte Menge [μ l]	6,5	6,5	6,5	1,5	1,5
Applizierte Aktivität [Bq]	645	645	645	149	149
Messzeit Nulleffekt [s]	120	120	120	120	120
Nulleffekt [ips]	9,8	11,0	12,1	10,2	12,7
Messzeit Entscheidungsmessung	20	20	20	20	20
Bruttoeffekt Vorderseite (VS) [ips]	177,4	171,3	183,8	49,2	53,8
Bruttoeffekt Rückseite (RS) [ips]	46,5	52,3	47,7	27,1	25,8

3.1.16.2 Nulleffektmessungen

Bei den in Tabelle 6 aufgeführten Messungen wurde vor jeder Einzelmessung der Nulleffekt separat auf der leeren Messfläche bestimmt, während bei den Messungen mit I-125 in gleicher Weise jeweils nur eine Nulleffektmessung zu Beginn (und zwecks Kontrolle am Ende) der Messkampagne erfolgte. Die Zählraten für die fünf Nulleffektmessungen lagen bei 9,8 / 11,0 / 12,1 / 10,2 / 12,7 ips. Die Unsicherheiten der jeweiligen Nulleffektmessungen liegen im Bereich von 0,3 ips.

Es ist davon auszugehen, dass die Schwankung der Zählraten bei den Nulleffektmessungen zu einem Teil auf die Auswirkung einer unterschiedlichen Konfiguration des Messguts im Abzug, in dem die Experimente durchgeführt wurden, und zum Teil auf äußere Einflüsse zurückzuführen ist. Die Monte-Carlo-Simulation in Anhang A (Abschnitt 8.1.7), deren Ergebnisse in Tabelle 12 wiedergegeben sind, zeigt, dass ein gleichartiges Messobjekt, das direkt neben dem Kontaminationsmonitor in Messanordnung platziert ist, das Messergebnis nicht wesentlich beeinflusst.

Es ist ferner zu bemerken, dass der Bruttoeffekt für die Messungen an den Handschuhen (auf dem Messplatz) bei mehr als dem 15-Fachen des Nulleffekts und bei ca. dem Hundertfachen der Schwankungsbreite des Nulleffekts liegt. Bei den Messungen an den Papiertüchern sind es das 5-Fache des Nulleffekts und das Zwanzigfache der Schwankungsbreite des Nulleffekts. Für die Interpretation der Ergebnisse ist daher die Schwankung der Nulleffektmessungen ohne jede Bedeutung.

3.1.16.3 Vorgehensweise zur Umrechnung der Zählraten in Aktivitäten

Für die Umrechnung der Nettoeffekt-Zählrate [ips] in eine Aktivität [Bq] wird von der vom Hersteller angegebenen Effizienz von 35 % für Lu-177 ausgegangen. Dieser Wert gilt bei Kontaktmessung und muss auf den Abstand von im Mittel 6 mm zwischen Messgut und Detektorfläche korrigiert werden. Abbildung 5 zeigt hierzu den Verlauf der Effizienz als Funktion des Abstands (ohne Abschirmmaterial). Die Darstellung erfolgt in relativen Werten (Kontakt = 100 %). Der gesuchte Wert der Effizienz ergibt sich bei 7 mm Abstand ohne Abschirmung zu 29 %.

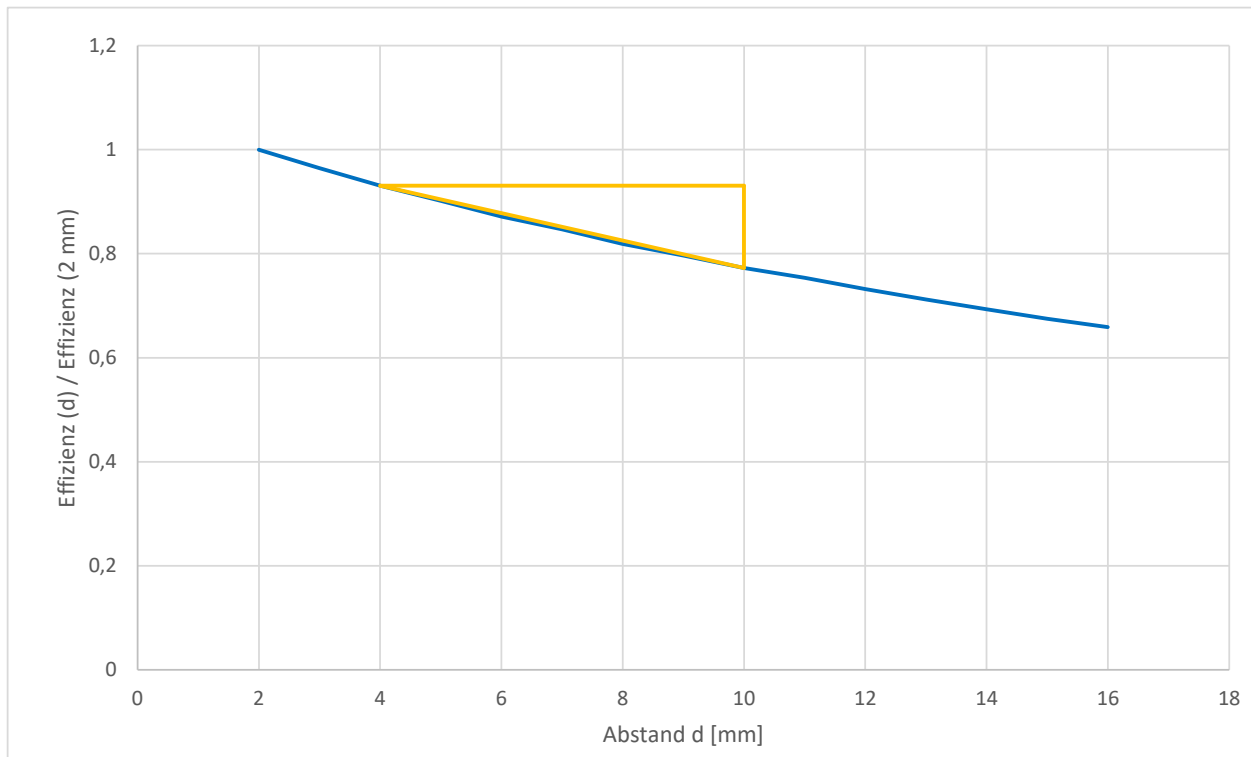


Abbildung 5: Abstandsabhängigkeit der relativen Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Betastrahlung, Elektronen und Photonenstrahlung für Lu -177m (relative Werte)

Für die Messung eines Handschuhs, bei dem beim Ablegen die Innenseite nach außen gekehrt ist, ist außerdem eine einlagige Abschirmung durch Latex oder Nitril zu berücksichtigen. Abbildung 6 zeigt die Abnahme der Effizienz mit der Dicke der Abschirmschicht aus leichtem Material. Diese Kurve zeigt relative Werte, wobei 100 % dem Fall ohne Abschirmung entspricht.

Für die Ermittlung der Effizienz bei einem gegebenen Abstand (Abbildung 5) und einer gegebenen Abschirmung (Abbildung 6) sind die beiden aus den Kurven abgelesenen Faktoren zu multiplizieren. Für den Fall einer Abschirmdicke 200 µm (für 2 Lagen des Handschuhmaterials) und einem Messabstand 7 mm erhält man aus der ursprünglichen Effizienz 35 % auf diese Weise 7,4 %.

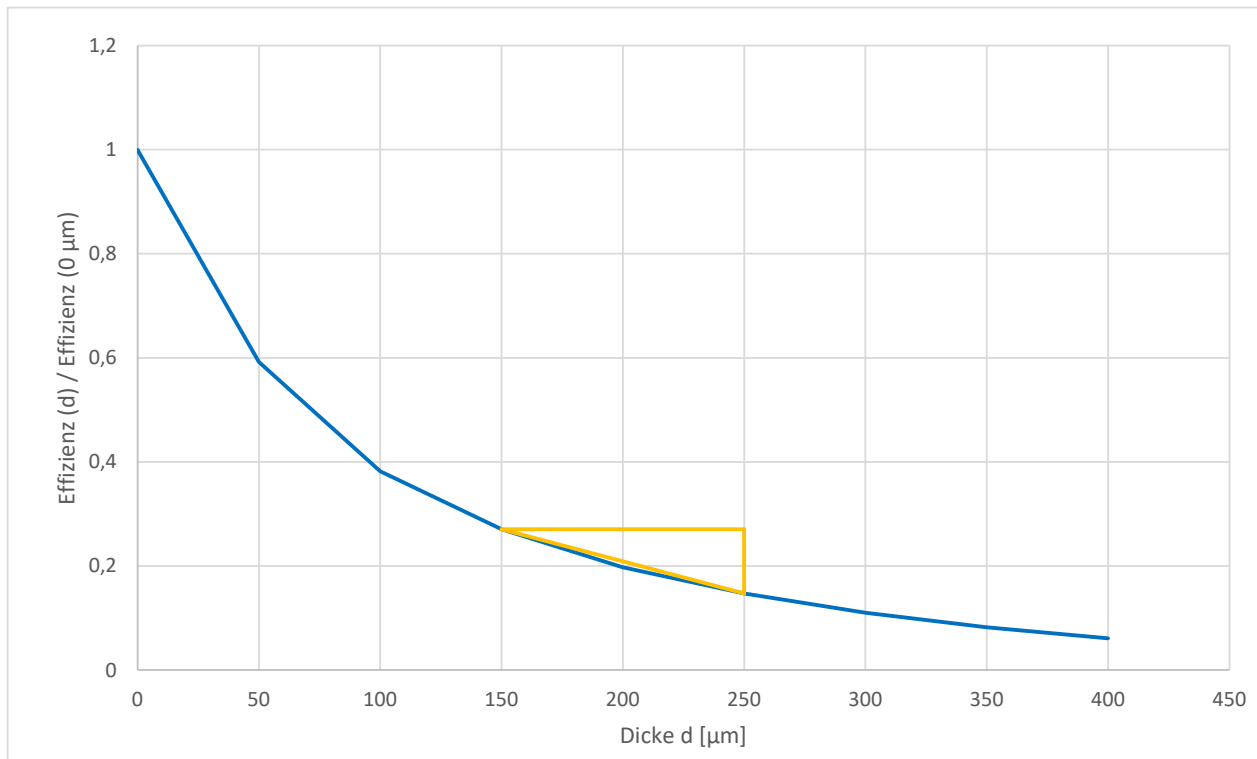


Abbildung 6: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des Materials für Lu -177

Mit den angegebenen Werten für die Effizienz berechnen sich aus den Zählraten gem. Tabelle 6 die in Tabelle 7 angegebenen Aktivitäten als Messergebnisse. Auf die hier bereits mit angegebenen Messunsicherheiten wird im folgenden Abschnitt 3.1.16.4 eingegangen.

Tabelle 7: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für Lu-177 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz

	Applizierte Aktivität [Bq]	Messergebnis Vorderseite [Bq]	Messergebnis Rückseite [Bq]
Effizienz		29 %	7,4 %
Handschuh 1	645 Bq ± 71	577 ± 117	499 ± 182
Handschuh 2	645 Bq ± 71	552 ± 112	562 ± 204
Handschuh 3	645 Bq ± 71	591 ± 120	484 ± 176
Papiertuch 1	149 Bq ± 20	134 ± 28	230 ± 85
Papiertuch 2	149 Bq ± 20	141 ± 29	178 ± 66

Diese Messergebnisse lassen sich wie folgt interpretieren:

- Der Ansatz der korrigierten Effizienz von 29 % für die Vorderseitenmessung (ohne Abschirmung) führt zu einer guten Reproduktion der applizierten Aktivität sowohl auf den Handschuhen als auch auf den Papiertüchern (Unterschätzungen von 10 % bis 15 % bzw. ca. 5 % bis 10 %).
- Der Ansatz der korrigierten Effizienz von 7,4 % für die Rückseitenmessung (mit Abschirmung durch zwei Lagen Latex/Nitril) führt zu einer ebenfalls relativ guten Reproduktion der applizierten Aktivität auf den Handschuhen (Unterschätzungen 15 % bis 25 %) und zu einer moderaten Überschätzung⁶ der Aktivität auf den Papiertüchern (Überschätzungen 20 % bis 50 %).

Wäre bei der Auswertung in fehlerhafter Anwendung der vom Hersteller genannte, für un abgeschirmte Kontaktmessungen gültige Wert der Effizienz von 35 % angewendet worden, hätten sich die in Tabelle 8 gezeigten Werte für die Aktivität ergeben. Wegen des viel zu hoch angesetzten Wertes der Effizienz werden hierbei die Werte der applizierten Aktivität bei den Rückseitenmessungen um bis zu einem Faktor 6 unterschätzt.

Tabelle 8: Fehlerhafte Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papiertüchern für Lu-177 mit dem für Kontaktmessung geltenden Wert der Effizienz

	Applizierte Aktivität [Bq]	Messergebnis Vorderseite [Bq]	Messergebnis Rückseite [Bq]
angesetzte Effizienz		35 %	35 %
Handschuh 1	645 Bq ± 71	479	105
Handschuh 2	645 Bq ± 71	458	118
Handschuh 3	645 Bq ± 71	491	102
Papiertuch 1	149 Bq ± 20	111	48
Papiertuch 2	149 Bq ± 20	117	37

Der Vergleich der in beiden Tabellen (Tabelle 8 und Tabelle 7) angegebenen Ergebnisse führt auf den Faktor, mit dem der Einfluss von Geometrie und Abschirmung beschrieben wird (vgl. f_G in Abschnitt 3.1.6.1 bzw. f_K in Abschnitt 3.1.6.2). Auf den jeweils abdeckend zu wählenden Wert wird in Abschnitt 5.1.1 im Zusammenhang eingegangen.

3.1.16.4 Messunsicherheiten

Die bei den hier durchgeführten Messungen relevanten Arten von Typ-B-Messunsicherheiten sind aufgrund ihrer Gleichartigkeit für die Versuche mit I-125 und Lu-177 in Anhang B (Abschnitt 9) ausführlich dargestellt. Dort ist auch die gemeinsame Behandlung von Typ-B-Messunsicherheiten, die durch verschiedene Messparameter verursacht werden, beschrieben. An dieser Stelle werden daher die Unsicherheiten lediglich zusammengestellt. Tabelle 9 gibt hierzu einen Überblick.

⁶ Diese Überschätzung bei Rückseitenmessung der Papiertücher könnte darauf zurückzuführen sein, dass durch den Bezug der Effizienz auf eine für die Messungen an den Handschuhen geltende Abschirmdicke 200 µm die Abschirmung durch das Papier überschätzt wird, so dass für die Rückseitenmessung der Papiertücher ein höherer Wert der Effizienz eingesetzt werden müsste. Diese Modellierung war jedoch im in Anhang A beschriebenen MCNP-Modell nicht darstellbar.

Tabelle 9: Überblick über die Messunsicherheiten bei der Messung von Lu-177

Einflussgröße	Rel. Unsicherheit	Quelle
Aktivitätsmenge	10 %	Messung Gammaskpektrometrie BS
Zerfallskorrektur	-	Phys. Gesetzmäßigkeit
Pipettenfehler	2,6 % Handschuh, 7,0 % Papiertuch, vgl. Abschnitt 9.1.5, Anh. B	Nach DIN EN ISO 8655
Abstand Detektor-Messgut	9 %, vgl. Abbildung 5	MCNP-Simulationen, Anh. A
Abschirmung durch Messgut	30 % bei Rückseite, vgl. Abbildung 6	MCNP-Simulationen, Anh. A
Umgebungseinstrahlung	~0, vgl. Tabelle 12	MCNP-Simulationen, Anh. A
Position Messgut unter Detektor	ca. 10 %, vgl. Abbildung 22	MCNP-Simulationen, Anh. A
Detektorwirkungsgrad	15 %	Herstellerangaben
Zählrate	1,6 % - 4,4 %	DIN 25457-1
Nulleffektmessung	2,6 % - 2,9 %	DIN 25457-1

3.1.17 Rückschluss auf die Aktivität von Lu-177m und Einhaltung der Freigabewerte insgesamt

Das Ziel der Messungen besteht in der Angabe der Aktivität für Lu-177m und der Prüfung der Einhaltung des Freigabewerts nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV, wie im Bericht zu AP 2 dieses Vorhabens dargestellt wurde. Aufgrund der Kenntnis des Aktivitätsverhältnisses der beiden Radionuklide Lu-177 und Lu-177m, welches hier sowohl aufgrund der Eingangsmessung als auch aufgrund der Spezifikation (Abschnitt 3.1.14) vorliegt, kann die Aktivitätsangabe für Lu-177m erfolgen. Aus dem in der Eingangsmessung (s. Abschnitt 3.1.14) bestimmten Aktivitätsanteil von 0,08 % ergibt sich, dass die massenbezogene Aktivität von Lu-177m bei ca. 0,07 Bq/g bis 0,08 Bq/g für Handschuhe und Papiertücher liegt und somit den massenbezogenen Freigabewert von 0,1 Bq/g nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV unterschreitet.

Die Unterschreitung der individuellen Freigabewerte für Lu-177 und Lu-177m erlaubt noch keine Aussage über die Freigabefähigkeit des Materials insgesamt, da noch die Summenformel nach Anl. 8 Teil A Nr. 1 Buchst. e StrlSchV bzgl. der Freigabewerte nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV anzuwenden ist. Im vorliegenden Fall liegt dieser Wert z. B. für einen Handschuh zum Zeitpunkt der Messung oberhalb von 1, da sich die beiden Anteile zur Summenformel wie folgt addieren:

$$\frac{95 \text{ Bq/g}}{100 \text{ Bq/g}} + \frac{0,08 \text{ Bq/g}}{0,1 \text{ Bq/g}} = 1,8 > 1,0$$

Nach einer weiteren Abklingzeit von mehr als zwei Halbwertszeiten von Lu-177 (d. h. von zweimal 6,64 d) sinkt der Wert des ersten Summanden in der Summenformel auf ein Viertel, und die Summenformel würde den Wert von 1,0 erreichen. Nach drei Halbwertszeit von Lu-177 bzw. ca. 3 Wochen würde der Wert der Summenformel von 1,0 deutlich unterschritten werden. In diesen Zeiträumen nimmt die Aktivität von Lu-177m nur unwesentlich ab.

Anmerkung: Hiermit wird lediglich eine Aussage für das der Messung direkt unterzogene Messgut getroffen. Für die Interpretation der Aktivität im gesamten Messgut eines Abfallbehälters sind die Aktivitäten in den anderen Verbrauchsmaterialien und in den Restflüssigkeitsmengen in Spritzen und Vials zu berücksichtigen. Hierauf wird in Abschnitt 5 eingegangen.

3.1.18 Durchführung der Versuche zur Bestimmung der Restaktivität in Einwegspritzen

Bei den meisten hier relevanten Behandlungsmethoden wird dem Patienten das radioaktive Präparat mittels einer Einweg-Kunststoffspritze injiziert. Aufgrund des bauartbedingten Totraums verbleibt dabei immer eine geringe Menge Restflüssigkeit in der Spritze. Der unmittelbare messtechnische Nachweis dieser Kontamination (durch Direktmessung) würde sich aufgrund der höheren Abschirmwirkung der Kunststoffwand schwieriger als bei anderen Verbrauchsmaterialien gestalten.

Daher wurde bei den Einwegspritzen ersatzweise die verbleibende Restmasse messtechnisch bestimmt und diese in eine Aktivität umgerechnet. Die Wirknuklide befinden sich üblicherweise in wässriger Lösung, sodass für diese Versuche ersatzweise Leitungswasser verwendet werden kann.

Von insgesamt drei Einwegspritzen (maximales Volumen 5 ml) wurde mittels Differenzwägung die Nettomasse der in der Spritze verbleibenden Restflüssigkeit bestimmt. Diese wurde in mit Hilfe der Dichte von Wasser (ρ (20 °C) = 0,9982 g/cm³) in ein Volumen der Restflüssigkeit umgerechnet.

Tabelle 10: Bestimmung der verbleibenden Restflüssigkeit in Einwegspritzen

	Masse leer [g]	Masse mit Restflüssigkeit [g]	Restflüssigkeit [g]	Restflüssigkeit [μ l]
Spritze 1	8,0156	8,0701	0,0545	54,6
Spritze 2	8,0076	8,0785	0,0709	71,0
Spritze 3	7,9081	8,1027	0,1946	195

Die verbleibende Restflüssigkeit wird anschließend über die volumen-/massenspezifische Aktivität in eine Gesamtaktivität umgerechnet, welche nach den Anwendungen in den Spritzen verbleibt. Die Gesamtaktivität für den Zeitpunkt $t = 0$ mit der vom Hersteller angegebenen Referenzaktivität berechnet, die Aktivitäten zu späteren Zeitpunkten mit der entsprechenden Abklingrate. Es werden die zwei Nuklide aus Abschnitt 3.1.1 betrachtet.

Folgende spezifische Aktivitäten wurden für die Berechnung berücksichtigt, wobei die Masse des Volumens 1 ml gleich 1 g gesetzt wurde:

- I-125: 11,88 kBq/g (gemäß Messung der PTB an der BS vorliegenden Probe)
- Lu-177m: 82 kBq/ml (gemäß Herstellerangabe zu Lu-177 sowie einer maximal zulässigen Verunreinigung von 0,02 %)

Die verwendete Feinwaage hat im relevanten Messbereich eine Toleranz von 0,00001 g bzw. 0,01 mg. Falls die Massen typischer Verbrauchsmaterialien sowie der Restmengen in Einwegspritzen in einer radiologischen Praxis bestimmt werden sollen, können Waagen mit deutlich geringerer Auflösung verwendet werden, da die benötigte Genauigkeit der Massenangabe von Einzelobjekten (Handschuh e, Papiertücher usw.) für die Freigabe im Bereich von 0,1 g liegt und für Restflüssigkeitsmengen im Bereich von 0,01 g. Die in Tabelle 10 beobachtete Streubreite der Restflüssigkeitsmengen legt nahe, dass für die Angabe eines belastbaren Mittelwerts mehrere Wägungen nach typischer Applikation durchgeführt und ausgewertet werden sollten.

4 Messungen an alphastrahlenden Radionukliden

4.1.1 Hintergrundinformation

Messungen an flüssigen radioaktiven Stoffen mit alphastrahlenden Radionukliden konnten nicht im BS-eigenen Kontrollbereich durchgeführt werden, da BS nur über eine Umgangsgenehmigung mit beta-/gammastrahlenden Radionukliden verfügt. Aufgrund einer langjährigen Zusammenarbeit zwischen BS und der Bayer AG im Bereich Strahlenschutz ergab sich auf Anregung von BS die Möglichkeit, dass geeignete Experimente mit Flüssigkeiten, in denen alphastrahlende Radionuklide enthalten waren, durch die Bayer AG am Standort Berlin durchgeführt wurden. Die Messergebnisse wurden von der Bayer AG zwecks Verwendung im vorliegenden Forschungsvorhaben freundlicherweise zur Verfügung gestellt.

4.1.2 Zielsetzung, Planung und Durchführung der Messungen

Die Zielsetzung der von der Bayer AG durchgeführten Messungen lag insbesondere darin, zu untersuchen, wie eine Flüssigkeit mit alphastrahlenden Radionukliden, die in dieser Form einer Direktmessung nicht zugänglich ist, in eine Form überführt werden könnte, dass eine zuverlässige Messung mittels Kontaminationsmonitor erfolgen kann. Hierbei wurde eine gefahrlose Handhabung durch geschultes Personal ohne das Risiko einer Kontaminationsverschleppung in den Ablauf einbezogen.

Die Vorgehensweise bestand darin zu untersuchen, welche Zählrate im Alpha-Kanal eines Kontaminationsmonitors auf verschiedenen Materialien, die die ausgeleerte Flüssigkeit mit den alphastrahlenden Radionukliden aufnehmen können, erzielt werden kann im Vergleich zum Referenzfall, in dem die Flüssigkeit auf einer Glasoberfläche ausgeleert wird und dort verdunstet. In diesem Referenzfall wird eine optimale Messgeometrie erzielt.

Die Durchführung der Versuche erfolgte in Abstimmung mit BS im Kontrollbereich der Bayer AG am Standort Berlin. Die Beschreibung der Versuche und deren Ergebnisse wurden mit dem Bericht [BAY 21] zur Verfügung gestellt.

4.1.3 Durchgeführte Messungen [BAY 21]

Die in diesem Abschnitt wiedergegebenen Versuchsbeschreibungen sind vollständig aus [BAY 21] übernommen. Sie werden daher zur besseren Lesbarkeit nicht jeweils einzeln als Zitat gekennzeichnet.

Das zu testende Material wurde auf die beschichtete Seite eines Stücks Filterpapier gelegt. Mittels zweier Capständer wurde ein Abstand von 2,5 cm zum Material festgelegt, auf welche ein mobiler Kontaminationsmonitor (LB 124 SCINT, Berthold) über dem Material positioniert wurde. Die Aufnahme der Messwerte erfolgte 10 Sekunden nach der Positionierung des Monitors. Zunächst wurde das Material ohne Auftragen des Ra-223 gemessen (Leerwert). Dann wurde 1 ml einer Ra-223 Lösung mit einer Dosis von ca. 1 kBq/ml (in Acetat-Puffer) auf das Material pipettiert und direkt gemessen (Zeitpunkt t_0). Nach 30 und 60 min erfolgten erneut Messungen der kontaminierten Materialien (Zeitpunkte t_{30} , t_{60}). Außerdem wurde nach Entfernen des Materials das jeweils untergelegte beschichtete Filterpapier gemessen. Die Leerwerte wurden von den folgenden Messwerten abgezogen, um evtl. vorbestehende Kontaminationen des Materials auszuschließen.

Als absolute Referenz wurde die gleiche Menge Ra-223 Lösung auf den Boden einer Zellkulturschale pipettiert und dort für 24 h vollständig trocknen gelassen, um die Abschirmung der α -Strahlung durch die Flüssigkeit aufzuheben.

Getestete Materialien:

- Kleenex (3x gefaltet)
- Zellstofftupfer
- Filterpapier (unbeschichtete Seite)
- Papierhandtuch
- Pflaster (Hansaplast)
- Mullkompressen (Gazin[®], 10 x 10 cm, 17-fädig, 8-fach, Lohmann & Rauscher)
- Druckerpapier (80 g/m²)

Testlösung:

- Ra-223-chlorid (1:1000 Bq/ml)

Auftragsmenge und -volumen:

- 1:1000 Bq in 1 ml

4.1.4 Messergebnisse [BAY 21]

Die in diesem Abschnitt wiedergegebenen Messergebnisse sind vollständig aus [BAY 21] übernommen, der Text ist aus der Quelle adaptiert. Sie werden daher zur besseren Lesbarkeit nicht jeweils einzeln als Zitat gekennzeichnet.

Für alle gemessenen Materialien zeigte sich im Lauf der Zeit ein Anstieg der detektierten α -Strahlung. Die geringste α -Strahlung wurde über der flüssigen Lösung detektiert. Der stärkste Anstieg wurde im Papierhandtuch⁷ gemessen. Die durch den Monitor detektierten ips-Werte schwankten während der Messung um ca. $\pm 5\%$.

Abbildung 7 zeigt die Impulse pro Sekunde (ips) zu den Zeitpunkten 0, 30 und 60 min nach Auftragen der Ra-223-Lösung, sowie die Messung des Untergrundes nach Entfernen des getesteten Materials. Die detektierte α -Strahlung war nach 60 min im Papierhandtuch signifikant höher als im Kleenex (t-test: $p < 0,05$). Mittelwerte \pm SD, $n = 3$.

⁷ Es handelte sich um ein handelsübliches dünnes Papierhandtuch, wie es für Handtuchspender verfügbar ist.

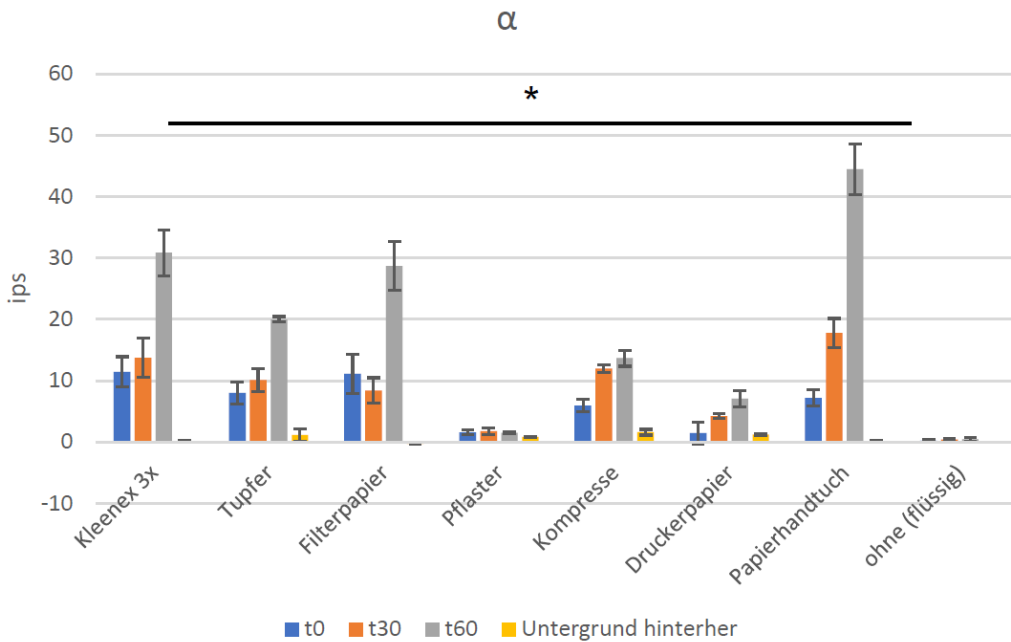


Abbildung 7: Detektierte α -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf verschiedene Materialien

Bei dem Papierhandtuch zeigte sich bis zu 60 min nach Auftragen der Lösung ein sehr starker Anstieg der detektierten α -Strahlung. Um zu sehen, ob es darüber hinaus noch weiter ansteigen würde, wurde die Messung mit dem Papierhandtuch über einen längeren Zeitraum wiederholt. Es zeigte sich jedoch kein stärkerer Anstieg mehr bei den Zeitpunkten nach 60 min (Abbildung 8).

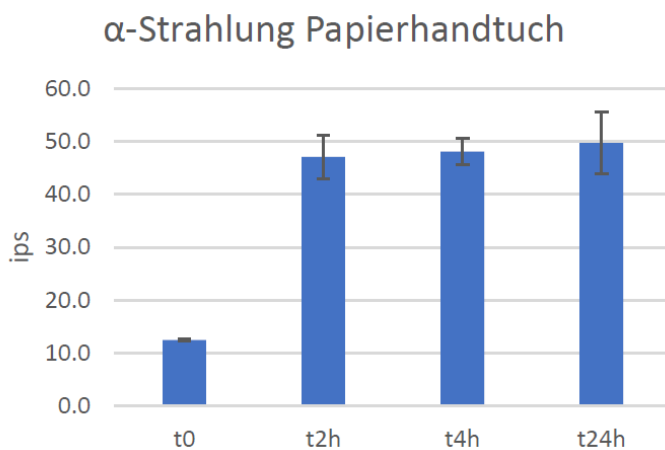


Abbildung 8: Detektierte α -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf ein Papierhandtuch zu verschiedenen Zeitpunkten

Als absolute Referenz wurde das nach 24 h völlig trockene Ra-223 in einer Zellkulturschale gemessen: Für die α -Strahlung wurden 71,8 ips und für die β/γ -Strahlung 332,3 ips gemessen.

Entsprechend zeigte sich bezogen auf die absolute Referenz (24 h eingetrocknet), dass die relative Abschirmung der α -Strahlung nach einer Stunde bei dem Papierhandtuch am geringsten war (ca. 38 %) wohingegen in der flüssigen Lösung und im Pflaster annähernd 100 % der α -Strahlung abgeschirmt wurden.

Abbildung 9 zeigt die prozentuale Abschirmung der α -Strahlung zu den Zeitpunkten 0, 30 und 60 min nach Auftragen der Ra-223-Lösung bezogen auf eine 24 h eingetrocknete Probe.

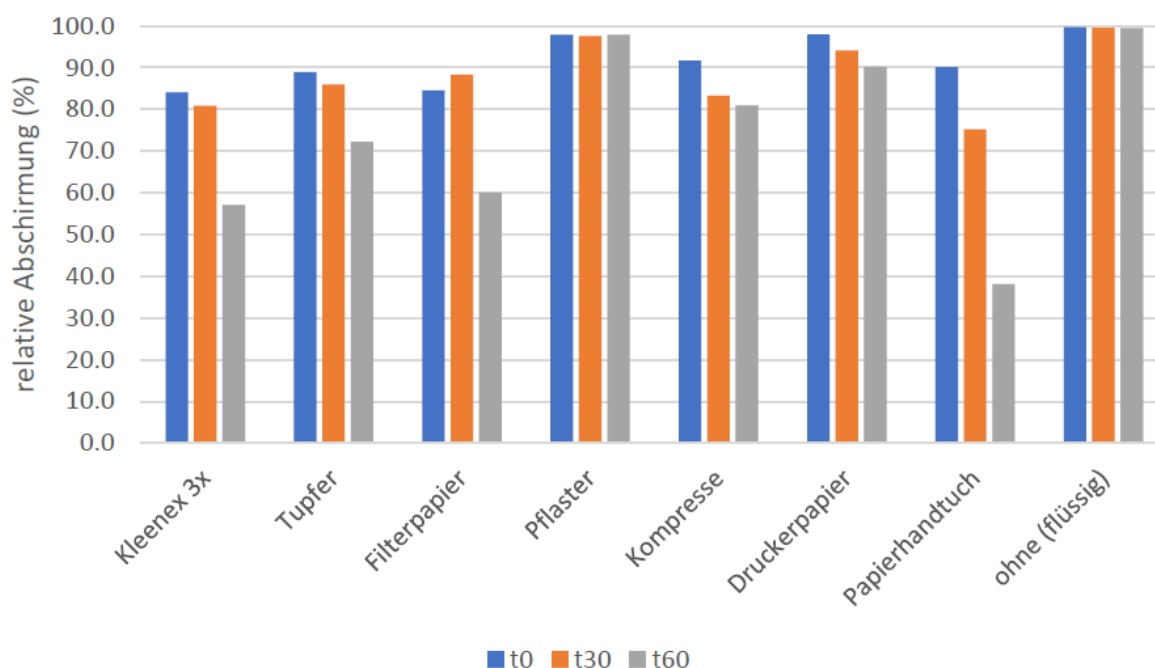


Abbildung 9: Relative Abschirmung der α -Strahlung

Für die β/γ -Strahlung wurde für alle getesteten Materialien sowie die Flüssigkeit eine Kontamination durch den Monitor detektiert. Insgesamt gab es bei der β/γ -Strahlung keinen so deutlichen Anstieg über die Zeit betrachtet. Auch hier war die detektierte Strahlung über der Flüssigkeit am geringsten.

Die Messung des Untergrundes nach Entfernung des Materials zeigte bei keinem Material eine Kontamination. Das leicht erhöhte Signal beim Druckerpapier ist darauf zurückzuführen, dass beim Bewegen der Proben etwas von der Flüssigkeit auf den Untergrund gelaufen war.

Abbildung 10 zeigt die Impulse pro Sekunde (ips) zu den Zeitpunkten 0, 30 und 60 min nach Auftragen der Ra-223-Lösung, sowie Messung des Untergrundes nach Entfernen des getesteten Materials. Mittelwerte \pm SD, n = 3 (mit „*“ ist ein Fall mit hoher Standardabweichung gekennzeichnet, wobei bei einer Probe Ra-223-Lösung durch Bewegung teilweise vom Papier heruntergelaufen war.)

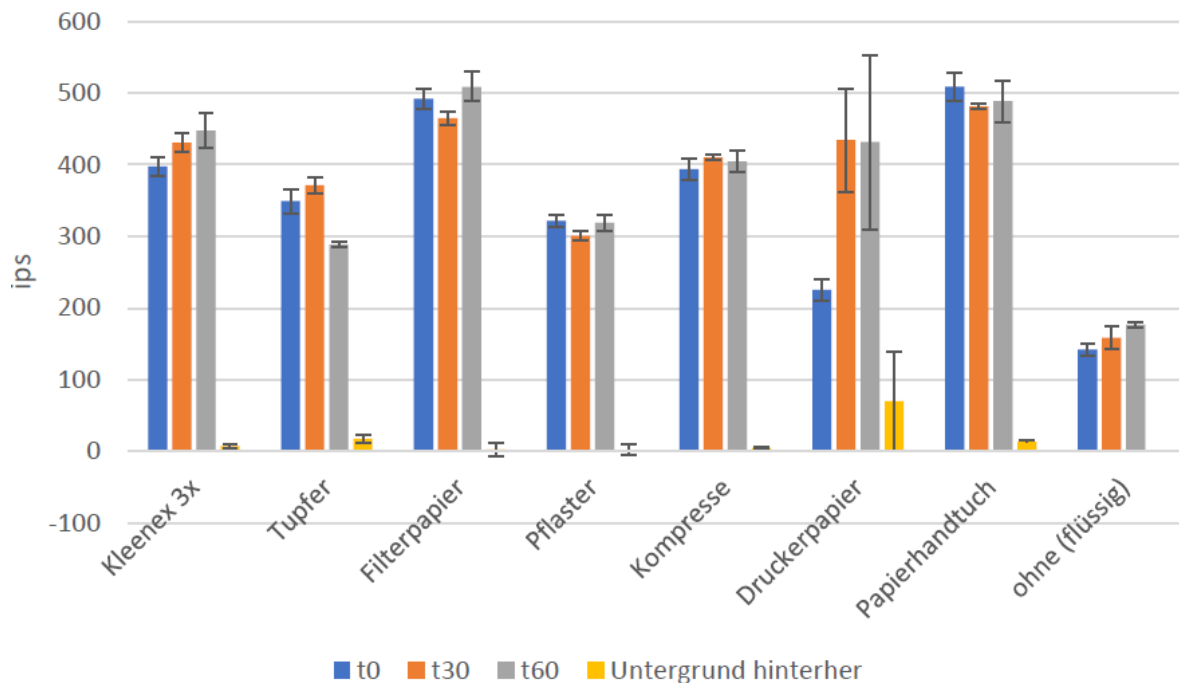


Abbildung 10: Detektierte β -Strahlung nach Auftragen einer Ra-223-Lösung auf verschiedene Materialien

Die beste Detektierbarkeit der α -Strahlung wurde bei dem Papierhandtuch gefunden. Nach 60 min. Trocknen waren dort die Counts signifikant höher als im Kleenex, das den zweithöchsten Wert zeigte. Es wurde beobachtet, dass die α -Strahlung größer wurde bzw. die Abschirmung geringer, je stärker die Lösung in dem Material eingetrocknet war, wie es z.B. im Papierhandtuch der Fall war. Das Pflaster blieb über die Zeit eher nass und trocknete nicht vollständig ein, dort zeigte sich auch die stärkste Abschirmung unter den getesteten Materialien. Das Druckerpapier war zu diesem Zweck ungeeignet, da es die Flüssigkeit kaum aufnahm, so dass die Gefahr eines Herunterlaufens der Flüssigkeit bei Bewegung bestand. Im Pflaster wurde die Flüssigkeit gut aufgenommen, blieb im Innern aber feucht, sodass die Abschirmung hier hoch war. Daher ist dieses Material nicht für eine Kontaminationsprüfung geeignet.

4.1.5 Schlussfolgerungen für die Freigabe von alphastrahlenden Radionukliden in Flüssigkeiten

Aus den in Abschnitt 4.1.3 dargestellten Versuchen und den in Abschnitt 4.1.4 wiedergegebenen Messergebnissen aus [BAY 21] lassen sich folgende wichtige Schlussfolgerungen für die Freigabe von Flüssigkeiten mit alphastrahlenden Radionukliden ziehen:

- Flüssigkeiten mit alphastrahlenden Radionukliden können durch Ausleeren auf ein saugfähiges Material, vorzugsweise ein dünnes Papierhandtuch oder ein Kleenex-Tuch, in eine für Kontaminationsmonitore zugängliche Messgeometrie überführt werden.
- Nach Trocknung des Flüssigkeitsanteils liegt die Selbstabschirmung in dieser Messgeometrie und bei den genannten Materialien bei ca. 50 % relativ zum Idealfall einer unabgeschirmten, vollständig ebenen Verteilung der Radionuklide (Eintrocknen auf Glasoberfläche). Die Trocknungszeit ist mit ca. 30 min für die Durchführung von Messungen in der Praxis geeignet.
- Hiermit ist die Direktmessung der Alphaaktivität mit einem Kontaminationsmonitor möglich. Aufgrund der extrem geringen Nulleffekt-Zählrate im Alpha-Kanal können sehr niedrige Nachweisgrenzen erreicht werden.

Hierbei wirkt sich positiv aus, dass die Energien von Alphateilchen für freigaberelevante alphastrahlende Radionuklide in einem relativ engen Energiebereich zwischen ca. 4 MeV und 8 MeV liegen. Die Reichweite der Alphateilchen in Luft liegt daher ebenfalls in einem relativ engen Bereich zwischen 20 mm und knapp 100 mm.

Die Anwendung der Ergebnisse soll anhand des Radiopharmakons Xofigo® erläutert werden. Hierbei handelt es sich um ein radiopharmazeutisches Präparat der Firma Bayer AG mit dem Wirkstoff $^{223}\text{RaCl}_2$ (Radium-223-Dichlorid). Der aktive Bestandteil des Präparats ist Ra-223, welches durch Alpha-Zerfall mit einer Halbwertszeit von 11,4 Tagen zerfällt. Herstellungsbedingt sind neben dem Wirknuklid auch die Verunreinigungsnuclide Ac-227 und Th-227 enthalten.

Bei älteren Chargen stellte noch vor einigen Jahren Ac-227 mit einer langen Halbwertszeit von 21,77 Jahren eine Herausforderung für die Freigabe dar, da der Spezifikationswert für dessen maximalen Anteil an der Gesamtaktivität früher mit 0,004 % (40 ppm) relativ hoch lag und der Freigabewert für die uneingeschränkte Freigabe gem. Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV bei lediglich 0,01 Bq/g liegt. Präzise Labormessungen haben aber schon damals gezeigt, dass der tatsächliche Anteil an Ac-227 in der Regel weit niedriger als der Spezifikationswert liegt. Zwischenzeitlich konnte der Spezifikationswert zunächst bis auf 4 Bq Ac-227 und seit 2017 bis auf 0,14 Bq Ac-227 pro Vial gesenkt werden. Daher kommt ein messtechnischer Nachweis bzgl. der Freigabe in Betracht.

Ac-227 zerfällt durch Beta-Zerfall in Th-227, welches seinerseits durch Alpha-Zerfall zerfällt. Aufgrund der deutlich längeren Halbwertszeit des Mutternuclids gegenüber der des Tochternuclids (21,8 a gegenüber 18,7 d) stellt sich nach ca. 10 Halbwertszeiten des kurzlebigen Nuclids ein Gleichgewicht ein, in dem die Gesamtaktivität durch die Aktivität des Mutternuclids bestimmt wird. Aufgrund der besseren Detektierbarkeit von Alphastrahlung ist es daher sinnvoll, die Aktivität von Th-227 zu bestimmen und diese mit der Aktivität von Ac-227 gleichzusetzen. Dies gilt allerdings nur für Zeitpunkte > 200 d nach dem Kalibrierdatum. Nach diesem Zeitraum kann davon ausgegangen werden, dass sämtliches nachgewiesenes Th-227 aus dem Zerfall von Ac-227 stammt und nicht bereits vorher vorhanden war.

Zur Abschätzung der Zählrate im Kontaminationsmonitor wird von folgender Überlegung ausgegangen:

- In der Ac-227-Kette liegen die folgenden fünf alphastrahlenden Radionuklide vor: Th-227, Ra-223, Rn-219, Po-215, Bi-211.
- Zwischen diesen besteht unter den o. g. Voraussetzungen Gleichgewicht, so dass die zu messende Aktivität aller alphastrahlenden Radionuklide gilt: $A_\alpha = 5 \cdot A_{\text{Ac-227}}$
- Die Effizienz eines Kontaminationsmonitors für α -strahlende Nuclide liegt typischerweise bei $\varepsilon_0 \approx 10 - 20 \%$.
- Der Ansatz eines Emissionswirkungsgrads bei α -Strahlung $\varepsilon_{em} \approx 0,25$ wird durch die o. g. Messungen der Bayer AG vollauf bestätigt.
- Zugrundegelegt wird der Freigabewert für Ac-227 von 0,01 Bq/g und zum Vergleich ein Freigabewert von 0,1 Bq/g, der für sehr viele alphastrahlende Radionuklide zutrifft.
- Bei einer Masse von 50 g Material bei einer einzelnen Applikation (siehe Abschnitt 3.1.4) entspräche die Ausschöpfung des Freigabewerts einer Aktivität von $A_{\text{Ac-227}} = 0,5$ Bq bzw. 5 Bq.
- Die zu erzielende Zählrate beträgt für beide Fälle:

$$r = \varepsilon_{em} \cdot \varepsilon_0 \cdot A_\alpha \approx 0,25 \cdot 0,1 \cdot 0,5 \text{ Bq} \cdot 5 \approx 0,06 \text{ s}^{-1} \text{ bzw. } 0,6 \text{ s}^{-1}$$

- Die Nachweisgrenze, die im Bericht zu Arbeitspaket 2 dieses Vorhabens [BS 21B] diskutiert wurde, beträgt:

$$r^{\#} = (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{r_0}{2} \cdot \left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_g} \right)}$$

- Unter dem Ansatz für gleiche Messzeiten für Untergrund und Messung ($\tau_0 = \tau_g = \tau$) und dem Ansatz des 95. Perzentils für das Vertrauensniveau ($k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} \approx 1,65$) sowie einer typischen Untergrundzählrate für den Untergrund von $r_0 = 0,1 \text{ s}^{-1}$ ergibt sich für verschiedene Messdauern τ :

τ [s]	10	20	50	100
$r^{\#}$ [s^{-1}]	0,33	0,23	0,15	0,1

Es ergibt sich, dass eine Zählrate von $0,06 \text{ s}^{-1}$ unterhalb der Nachweisgrenze liegt, während eine Zählrate $0,6 \text{ s}^{-1}$ nachgewiesen werden kann. Somit kann für das Material einer einzelnen Applikation der Nachweis geführt werden für solche Radionuklide, deren Freigabewert $0,1 \text{ Bq/g}$ beträgt, nicht aber für solche mit Freigabewert $0,01 \text{ Bq/g}$. Vereinigt man jedoch die Aktivität von beispielsweise drei Vials aus drei Applikationen in einer Messfläche, so entspricht die repräsentierte Masse von 150 g einer Grenzwertzählrate von $0,18 \text{ s}^{-1}$ bei einem Freigabewert von $0,01 \text{ Bq/g}$. Dieser Wert überschreitet die Nachweisgrenze bei einer Messzeit von 100 s deutlich.

Die Überprüfung der Einhaltung des Freigabewerts für die uneingeschränkte Freigabe von Abfällen, die Ac-227 in Form von kleinen Restflüssigkeitsmengen in Vials enthalten, kann somit durch das Ausleeren dieser Restflüssigkeitsmengen von mindestens drei Anwendungen auf ein Papiertuch in der oben beschriebenen Weise und die anschließende Messung der getrockneten Aktivität mit einem Kontaminationsmonitor erfolgen. Dies gilt auch für den Fall, dass neben der Aktivität in den Vials auch geringere Aktivitätsanteile auf den Verbrauchsmaterialien vorliegen.

5 Handlungsanleitungen zu Freigabemessungen

Im Folgenden sind Handlungsanleitungen skizziert, mit denen messtechnisch überprüft werden kann, ob kontaminierte Abfälle für die Freigabe geeignet sind. Für die Messungen wird ein Kontaminationsmonitor mit Plastiksintillationsdetektor vorausgesetzt, da davon ausgegangen werden kann, dass derartige Messgeräte in allen radiologischen Praxen vorhanden sind. Zu dem jeweils verwendeten Messgerät müssen die geräte- bzw. typspezifischen Parameter, insbes. das Oberflächenansprechvermögen bzw. die Effizienz für das nachzuweisende Radionuklid unter idealen Messbedingungen (Kontaktmessung, keine Abschirmung) bekannt sein. Für alle Messungen ist der Wert der Effizienz gem. Herstellerangabe für Kontaktmessungen einzusetzen und das Ergebnis ist je nach Messgeometrie mit dem Kompensationsfaktor gem. Abschnitt 5.1.1 zu multiplizieren.

Ferner wird vorausgesetzt, dass den Anleitungen des Herstellers für die Durchführung von Funktionsprüfungen, Messungen und wiederkehrenden Prüfungen gefolgt wird (vgl. hierzu die Aufstellungen in Arbeitspaket 1 dieses Vorhabens [BS 21A]).

Um eine eindeutige Zuordnung gewährleisten zu können, ist eine nuklidreine Sammlung des Abfalls unerlässlich und wichtige Voraussetzung für die Handlungsanweisungen.

Die drei dargestellten Handlungsanleitungen beziehen sich auf die folgenden Abschnitte im Bericht zu Arbeitspaket 2 dieses Vorhabens [BS 21B]:

- Abschnitt 5.1.2 stellt die Vorgehensweise für die Direktmessung von beta-/gammastrahlenden Wirknukliden dar. Diese bezieht sich auf Abschnitt 3.3.2 des Berichts zu Arbeitspaket 2 (Pfad B)
- Abschnitt 5.1.3 stellt die Vorgehensweise für die Aktivitätsbestimmung des freigaberelevanten Radionuklids aus Direktmessungen eines anderen beta-/gammastrahlenden Radionuklids dar. Diese bezieht sich auf die Abschnitte 3.3.2 und 3.4 des Berichts zu Arbeitspaket 2 (Pfade B und D).
- Abschnitt 5.1.4 stellt die Vorgehensweise für die Aktivitätsbestimmung für alphastrahlende Radionuklide dar. Diese bezieht sich auf Abschnitt 3.2 des Berichts zu Arbeitspaket 2 (Pfad A).

5.1.1 Ableitung eines Kompensationsfaktors für Freigabemessungen an charakteristischem Messgut in nuklearmedizinischen Einrichtungen

In diesem Abschnitt wird ein Kompensationsfaktor für die Durchführung der Messungen an kontaminierten Verbrauchsmaterialien beschrieben. Der Hintergrund hierfür lässt sich wie folgt zusammenfassen:

- Wenn Messungen gemäß Abschnitt 3 an (potentiell) kontaminierten Verbrauchsgütern wie Handschuhen und Papiertüchern durchgeführt werden, darf für eine korrekte Auswertung der gemessenen Zählrate zwecks Angabe der Aktivität nicht die für Kontaktmessungen gültige Effizienz des Kontaminationsmonitors verwendet werden, sondern es muss ein an die Messgeometrie angepasster Wert verwendet werden.
- Dies zeigt sich am Vergleich der Auswertung in den Tabellenpaaren Tabelle 2 und Tabelle 3 für I-125 sowie Tabelle 7 und Tabelle 8. Die jeweils erste Tabelle enthält eine Aktivitätsberechnung mit einem an Abstand und Abschirmung angepassten Wert der Effizienz, der jeweils aus detaillierten Photon- und Elektronentransportrechnungen mit einem Monte-Carlo-Modell (MCNP) abgeleitet wurde, während die jeweils zweite Tabelle das Ergebnis derselben Rechnung unter Anwendung der für Kontaktmessung gültigen Effizienz enthält. Die Verwendung der Hersteller-Effizienz führt – wie erläutert – systematisch zu niedrigen Aktivitätswerten, da dieser Wert von einer Messgeometrie im Kontakt und ohne Abschirmung ausgeht. Die aus den Simulationsrechnungen ermittelten Geometriefaktoren bewerten Abstandsabhängigkeit und Abschirmung realistischer, können mangels vollständig exakter Gerätedaten (Abmessungen, Abschneidekriterium für niederenergetische Elektronen und Photonen

usw.) die Messsituation aber nicht vollständig repräsentieren und führen – wie ebenfalls erläutert – zu einer (wenn auch geringeren) Über- bzw. Unterbewertung der wahren Aktivität.

- Wie bereits in Abschnitt 3.1.6.2 ausgeführt, soll es der Kompensationsfaktor vor diesem Hintergrund einem Anwender bei der Durchführung von vergleichbaren Messungen ermöglichen, die aus Herstellerangaben zu entnehmenden Werte der Effizienz für Kontaktmessungen anzuwenden und trotzdem eine valide, d. h. zuverlässige, aber konservative Interpretation der Messergebnisse zu erzielen. Die Kenntnis der Abhängigkeit der wahren Effizienz vom Abstand und von evtl. Abschirmung ist dann nicht mehr erforderlich, solange die in der jeweiligen Handlungsanleitung (Abschnitt 5.1.2 bzw. 5.1.3) angegebenen Randbedingungen eingehalten werden.

Im Wesentlichen lässt sich der Wert für den Kompensationsfaktor aus dem Vergleich der korrekt berechneten, auf das Messgut aufgetragenen Aktivität und der fehlerhaft unter Verwendung ausschließlich der Herstellereffizienz umgerechneten Aktivitäten bestimmen. Die nachfolgende Tabelle 11 fasst für die Wirknuklide, die der Freigabemessungen mittels Oberflächenkontaminationsmonitor zugänglich sind, den bzw. die Kompensationsfaktoren für Messungen der Vorderseite bzw. für Messungen eines auf links gedrehten Handschuhs zusammen.

Tabelle 11: Empfohlene Werte für den Kompensationsfaktor für Messungen mit Kontaminationsmonitor mit Plastiksintillator für verschiedene Arten von Wirknukliden mit und ohne Abschirmung

Wirknuklid	Kompensationsfaktor ohne Messgutabschirmung	Kompensationsfaktor mit Messgutabschirmung (Handschuh auf links gedreht)
Ga-68	Konservativ: vgl. Lu-177	Konservativ: vgl. Lu-177
In-111	Konservativ: vgl. Lu-177	Konservativ: vgl. Lu-177
I-125	2,0	2,5
Sm-153	vgl. Lu-177	vgl. Lu-177
Lu-177	1,5	4,0
Re-186 (α)	2,0	- *)
Tl-201(α)	2,0	- *)
Ra-223 (α)	2,0	- *)

*) keine Messung zulässig

Für Wirknuklide wie I-125, bei denen niederenergetische Gammastrahlung wesentlich zum Messsignal im Kontaminationsmonitor beiträgt, ist ein Kompensationsfaktor von 2,5 unabhängig von der Orientierung des Messguts (Handschuhaußenseite nach innen oder außen gekehrt, Papiertücher auch gefaltet usw.) anwendbar. Die Verwendung nur eines Wertes für beide Orientierungen stellt für die Vorderseitenmessung (keine Abschirmung) zwar einen vergleichsweise konservativen Ansatz dar, vermeidet aber fehlerhafte Durchführung der Messungen sehr wirksam.

Für betastrahlende Radionuklide wie Lu-177 ist dagegen die Berücksichtigung einer Orientierung von Handschuhen unerlässlich. Bei der Vorderseitenmessung (ohne Abschirmung) ist ein Kompensationsfaktor von 1,5 sinnvoll, durch welchen die reine Abstandsabhängigkeit der Effizienz kompensiert wird. Bei der Rückseitenmessung (mit Abschirmung) ist dagegen wegen der Reduktion der Effizienz durch Abschirmung ein Kompensationsfaktor von 4 notwendig. Sollte es dagegen möglich sein, Handschuhe u. dgl. direkt an ihrer (potenziell kontaminierten) Außenseite zu messen und Papiertücher ungefaltet auszubreiten, ist die Anwendung eines Kompensationsfaktors von lediglich 1,5 notwendig.

Für alphastrahlende Radionuklide ist nur eine Messung ohne weitere Abschirmungen möglich (vgl. Abschnitt 4). Unter den in Abschnitt 4 genannten Voraussetzungen ist ein Kompensationsfaktor anzuwenden, der die teilweise Abschirmung der Alphastrahlung kompensiert.

5.1.2 Handlungsanleitung zur Freigabe für die Direktmessung von beta-/gammastrahlenden Radionukliden

Die folgende Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die für I-125 in Abschnitt 3.1.8 dargestellt wurden. Ziel dieser Vorgehensweise ist es, durch Messungen mit Kontaminationsmonitor an Verbrauchsmaterialien einerseits und über Abschätzungen zum Aktivitätsgehalt in nicht vollständig geleerten Vials und Spritzen andererseits die massenbezogene Aktivität des Abfalls zu bestimmen. Hierbei werden einzelne Verbrauchsmaterialien, die aus mehreren Anwendungen stammen, stellvertretend für die gesamte Abfallmenge im Abfallbehälter einer Messung unterzogen.

Vorbereitung und Sammlung des Abfalls:

- Von repräsentativen Stücken der Verbrauchsmaterialien, die einer erhöhten Kontaminationsmöglichkeit ausgesetzt sind (insbesondere Einmalhandschuhe, ggf. auch Papiertücher) werden Einzelstücke für die spätere Messung ausgesondert.
 - Diese Verbrauchsmaterialien sollen zum Zeitpunkt der Messung im Vergleich zu den restlichen Abfallstücken jüngerem Datums sein und ihre Kontamination soll repräsentativ oder überschätzend für die anderen gleichartigen Abfallstücke sein. Diese Anforderungen erfüllen die jeweiligen Verbrauchsmaterialien aus typischer Anwendung, wenn sie gegen Ende des Abfallsammelzeitraums anfallen, aber auch solche Verbrauchsmaterialien, die aus einer Anwendung stammen, bei der größere Mengen des Radiopharmakons als üblich, z. B. durch Verschütten, freigesetzt wurden.
 - Zusätzlich wird im späteren Schritt 9 auch die Aktivität in Spritzen und Vials bewertet.
 - Zur Erleichterung der späteren Entnahme der Abfallstücke sowie ggf. der Vials und Spritzen sollten diese in einem kleinen separaten Plastikbeutel, der im Abfallsammelbehälter eingehängt ist, abgelegt werden.
 - Am Ende des Sammelzeitraums sollten mindestens sechs repräsentative Stücke der Verbrauchsmaterialien im separaten Plastikbeutel ausgesondert worden sein.
1. Für die weitere Vorgehensweise wird davon ausgegangen, dass die ausgewählten Abfallstücke (Messgut) getrennt vom übrigen Abfall im Abfallbehälter in dem separaten Plastikbeutel vorliegen, wie in Schritt 0 dargestellt. Die Masse dieser Abfallstücke im Plastikbeutel wird vor Beginn der Messungen durch Wägung bestimmt. Hierbei ist eine auf 1 g genaue Angabe ausreichend. Angesichts der grundsätzlichen Unsicherheiten ist es nicht notwendig, die Masse des Plastikbeutels in Abzug zu bringen.
 2. Es wird ferner das gesamte restliche Abfallsammelgefäß einer Wägung unterzogen und die Nettomasse der Abfälle bestimmt (das ist die Masse des reinen Abfalls ohne Sammelgefäß). Alternativ kann aus der Anzahl der Anwendungen, aus welchen Abfälle im Abfallsammelgefäß enthalten sind, und einer mittleren Masse der Verbrauchsmaterialien je Anwendung eine repräsentative Masse für den restlichen Abfall bestimmt werden. Sofern das Abfallsammelgefäß mit zur Entsorgung gegeben wird, ist seine Masse Bestandteil der Abfallbruttomasse.
 3. Mit einem Kontaminationsmonitor (vgl. die Liste von Messgeräten in AP 1 dieses Vorhabens [BS 21A]) wird zunächst der Nulleffekt für einen hinreichend langen Zeitraum (z. B. 300 s) auf derjenigen Fläche gemessen, auf der später das Messgut ausgebreitet wird und die sich abseits von potentiellen anderen Strahlenquellen befinden soll.

4. Die ausgewählten Abfallstücke werden aus dem Plastikbeutel entnommen und auf einer Unterlage nebeneinander und nicht überlappend flach und möglichst knitterfrei ausgebreitet. Falls eine kontaminierte Stelle ersichtlich ist, sollte diese nach oben zeigen. Sofern es problemlos möglich ist, sollten Handschuhe so ausgelegt werden, dass die Außenseite nach außen gekehrt ist und dass die Messung an der (einer höheren Kontaminationswahrscheinlichkeit ausgesetzten) Handinnenfläche erfolgt. Wenn dies nicht möglich ist, können sie mit nach außen weisender Innenseite gemessen werden.
5. Anschließend werden mittels einer dynamischen Messung Stellen lokal erhöhter Zählrate (sog. „Hotspots“) identifiziert. Dazu wird das eingeschaltete Messgerät langsam über alle Proben bewegt. Der Abstand zwischen Proben und Messgerät sollte möglichst klein sein. Mittels akustischer oder optischer Anzeige werden Stellen mit erhöhter Aktivität, d. h. angezeigter Zählrate, ausgemacht. Wenn solche Stellen gefunden werden, müssen diese Punkte für die Messungen im folgenden Schritt 6 in jedem Fall berücksichtigt werden.
6. Anschließend erfolgen die eigentlichen Entscheidungsmessungen. Dazu befindet sich das Messgerät ortsfest über den in Schritt 5 identifizierten Punkten, bzw., falls keine derartigen Stellen identifiziert werden konnten, erfolgt die Messung mittig über den jeweiligen Abfallstücken. Bei der Messung ist es empfehlenswert, das Messgerät auf Abstandshaltern abzulegen (hierzu eignen sich einfache Objekte, die ggf. anschließend entsorgt werden können). Der Abstand zwischen Messobjekt und Messgerät soll möglichst klein (< 10 mm) sein, das Messobjekt sollte jedoch das Messgerät nicht berühren, um eine Kontamination des Messgerätes zu vermeiden. Das Messgerät sollte sich in etwa zentrisch über den zuvor identifizierten Hotspots (bzw., falls solche nicht identifiziert werden konnten, zentrisch über dem Abfallstück) befinden.
7. Gemessen wird entweder die Zählrate (Anzahl Impulse pro Sekunde, Ips), welche gemäß Formel (2) in eine **flächenbezogene Aktivität**⁸ umgerechnet wird, oder es erfolgt direkt im Messgerät eine Umrechnung in eine flächenbezogene Aktivität, sofern das gesuchte Nuklid in der Datenbank des Messgeräts verfügbar ist und korrekt vom Anwender vor Beginn der Messungen eingestellt wurde. In beiden Fällen ist der jeweils zutreffende Kompensationsfaktor gem. Tabelle 11 zu berücksichtigen. Der in diesem Schritt bestimmte Wert für die flächenbezogene Aktivität wird im nächsten Schritt verwendet.
8. Die flächenbezogene Aktivität gemäß Schritt 7 wird in eine Gesamtaktivität für das der Messung unterzogene Messgut umgerechnet, indem die flächenbezogene Aktivität mit der Fläche des Messgutes multipliziert wird. Dies ergibt die Gesamtaktivität der oberflächlichen Kontamination in demjenigen Anteil des gesamten Abfalls, der einer Messung unterzogen wurde. Die **Gesamtaktivität der oberflächlichen Kontamination im gesamten Abfall** wird hieraus durch Multiplikation mit dem Verhältnis aus der Nettomasse des gesamten Abfalls im Sammelgefäß und der Masse der gemessenen ausgewählten Abfallstücke im Plastikbeutel bestimmt.

⁸ Die Werte der flächenbezogenen Aktivität des Messguts werden nicht direkt für einen Vergleich mit Freigabewerten herangezogen.

9. Die **Gesamtaktivität in Restflüssigkeitsmengen** in Spritzen und Vials wird aus den mittleren Restvolumina in Vials gemäß Verbrauch in den einzelnen Anwendungen und den Angaben in Abschnitt 3.1.18 zu den Restvolumina in Spritzen abgeschätzt (bei gleichartigen Spritzen unter Anwendung des in Abschnitt 3.1.18 genannten Volumens, andernfalls kann ein solches für die konkreten Spritzen vom Anwender selbst ermittelt werden). Fällt bspw. pro Anwendung eine Spritze an, so kann das gesamte Volumen der Restflüssigkeitsmenge aus dem mittleren Restvolumen in einer Spritze und der Anzahl der Anwendungen berechnet werden. Die Aktivität in der gesamten Restflüssigkeitsmenge im Abfallsammelgefäß ergibt sich dann als Produkt des Gesamtvolumens und der volumen- oder massenbezogenen Aktivität im Radiopharmakon zum gegenwärtigen Zeitpunkt.
10. Die **vollständige Gesamtaktivität im Abfall** setzt sich aus den beiden Werten aus Schritt 8 und Schritt 9 zusammen. Diese beiden Werte werden addiert und die Summenaktivität wird durch die gesamte Bruttomasse des Abfalls im Abfallsammelgefäß (gemäß Schritt 2) dividiert (da diese in jedem Fall weit unterhalb der zulässigen Mittelungsmasse von 300 kg gem. Mittelungsmasse gem. Anl. 8 Teil A Nr. 1 Buchst. c StrlSchV liegt, ist dies zulässig). Die gesamte Bruttomasse beinhaltet ggf. den Abfallbehälter, wenn dieser zur Entsorgung gelangt (s. Schritt 2). Dieser Wert entspricht der mittleren massenbezogenen Aktivität im Abfall.
11. Die sich so ergebende gesamte massenbezogene Aktivität wird mit dem **Freigabewert** für das Radionuklid gem. Anl. 4 Tab. 1 StrlSchV verglichen, wobei die jeweilige Freigabeoption (z. B. Sp. 3 für die uneingeschränkte Freigabe oder Sp. 9 für die Freigabe zur Beseitigung durch Verbrennung) berücksichtigt wird. Überschreitet die massenbezogene Aktivität nicht den Freigabewert, so kann die gesamte Abfallmenge im Abfallsammelgefäß freigegeben werden.

Diese Vorgehensweise soll durch das folgende Beispiel für I-125 erläutert werden, wobei nur Schritte aufgeführt werden, wobei nur Schritte aufgeführt werden, bei denen eine Messung oder quantitative Bewertung erfolgt:

- Schritte 0 und 1: Gesammelt wird insgesamt Abfall von 20 Anwendungen je 50 g Abfallmasse. Es werden 6 Handschuhe mit je 6 g Masse ausgesondert. Der gesamte Abfall ist in einen soliden Plastikbeutel von 50 g Masse verpackt.
- Schritt 2: Die Masse des Abfalls im Abfallsammelgefäß wird zu 1.000 g ermittelt (Abfallnettomasse).
- Schritt 3: Die Nulleffektzählrate wird zu 10 ips ermittelt.
- Schritt 6: Jedes der 6 Messobjekte wird gemessen. Es wird werden folgende Bruttozählraten ermittelt: 15 / 14 / 22 / 10 / 30 / 14 ips. Die gemittelte Bruttozählrate beträgt 17,5 ips, die gemittelte Nettozählrate somit 7,5 ips.
- Schritt 7: Die Nettozählrate 7,5 ips wird mittels der vom Hersteller angegebenen Effizienz von 12 %, der Messfläche von 170 cm² und dem Kompensationsfaktor 2,5 in eine flächenbezogene Aktivität von 0,92 Bq/cm² umgerechnet. Auf den (potentiell kontaminierten) Innenseiten der 6 gemessenen Handschuhe mit je 200 cm² liegen dann potentiell 1.103 Bq vor.
- Schritt 8: In der gesamten Abfallmenge liegen dann eine potentielle Gesamtaktivität von 1.103 Bq · 1.000 g / 36 g = 30.637 Bq durch Kontamination vor.
- Schritt 9: Bei 20 Anwendungen, einer Restflüssigkeitsmenge 0,07 ml je Spritze und einer volumenbezogenen (zerfallskorrigierten) Aktivität von 40.000 Bq/ml liegt eine Gesamtaktivität von 56.000 Bq in Flüssigkeit vor.

- Schritt 10: Die vollständige Gesamtaktivität im Abfall ergibt sich als Summe beider vorgenannten Anteile zu $56.000 \text{ Bq} + 30.637 \text{ Bq} = 86.637 \text{ Bq}$. Die massenbezogene Aktivität im Abfall beträgt $86.637 \text{ Bq} / (1.000 \text{ g} + 50 \text{ g}) = 82,5 \text{ Bq/g}$.
- Schritt 11: Der Freigabewert für I-125 beträgt nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrISchV 100 Bq/g . Im Abfall ist der Freigabewert daher eingehalten und könnte zur uneingeschränkten Freigabe gelangen.

5.1.3 Handlungsanleitung zur Freigabe bei Aktivitätsbestimmung des freigaberelevanten Radionuklids aus Messungen von beta-/gammastrahlenden Radionukliden

Diese Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die für Lu-177m in Abschnitt 3.1.12 dargestellt wurden. Ziel dieser Vorgehensweise ist es, durch Messungen mit Kontaminationsmonitor an Verbrauchsmaterialien die Aktivität für ein Radionuklid festzustellen, woraus die Aktivität des freigaberelevanten Radionuklids abgeschätzt werden kann.

Die Vorgehensweise folgt vollständig der in Abschnitt 5.1.2 gegebenen Darstellung. Sofern es problemlos möglich ist, sollten Handschuhe so ausgelegt werden, dass die Außenseite nach außen gekehrt ist und dass die Messung an der (einer höheren Kontaminationswahrscheinlichkeit ausgesetzten) Handinnenfläche erfolgt. Wenn dies nicht möglich ist, können sie mit nach außen weisender Innenseite gemessen werden. Abhängig von der Orientierung des Handschuhs ist der Kompensationsfaktor zu wählen.

Nach Ermittlung der massenbezogenen Aktivität für das gemessene Radionuklid (im praktischen Beispiel in Abschnitt 3.1.12 dieses Berichts Lu-177) erfolgt zusätzlich die rechnerische Ermittlung der massenbezogenen Aktivität auf Grundlage der Herstellerspezifikation und des Zerfalls für dasjenige Radionuklid, dessen Aktivität abgeleitet wird (im Beispiel also der Aktivität von Lu-177m, die aus derjenigen von Lu-177 abgeleitet wird).

Beide Werte der massenbezogenen Aktivität werden in die Summenformel unter Anwendung der Freigabewerte für die jeweilige Freigabeoption eingesetzt (vgl. Abschnitt 3.1.17). Überschreitet die Summenformel nicht den Wert 1, so kann die gesamte Abfallmenge im Abfallsammelgefäß freigegeben werden.

5.1.4 Handlungsanleitung zur Freigabe für alphastrahlende Radionuklide

Diese Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die gemäß der Darstellung in Abschnitt 4 für Ra-223 in Laboren der Bayer AG durchgeführt wurden. Ziel ist die Direktmessung der Aktivität der alphastrahlenden Radionuklide.

Die Vorgehensweise wird im Folgenden für ein Radiopharmakon beschrieben, dessen Hauptaktivität in Form von Restflüssigkeitsmengen in Vials und Spritzen vorliegt, während die evtl. freigesetzte Kontamination auf Abfallstücken nur eine untergeordnete Rolle spielt. Diese Situation ist z. B. bei dem Radiopharmakon Xofigo[®] gegeben, welches immer in derselben Darreichungsmenge pro Vial geliefert wird, aus welchem pro Anwendung eine dem Gewicht des Patienten entsprechende Menge entnommen wird, während der Rest im Vial verworfen wird. Vor Durchführung der Messungen ist sicherzustellen, dass der Abfall ausreichend lange abgeklungen ist, so dass die notwendigen Annahmen hinsichtlich der Aktivitätsverhältnisse zwischen Verunreinigungsnuklid, zu messendem Nuklid und ggf. Wirknuklid zutreffen. Im Beispiel des Radiopharmakons Xofigo[®] mit den beiden Verunreinigungsnukliden Ac-227 und Th-227 wird der messtechnische Nachweis über das alphastrahlende Th-227 geführt, das aber erst radioaktives Gleichgewicht mit dem Mutternuklid Ac-227 erreichen muss (vgl. Abschnitt 4.1.5 für die quantitative Anwendung für die Freigabe von Xofigo[®]).

1. Von den Vials mit Restflüssigkeitsmengen werden im Zeitraum, über den die Abfälle gesammelt werden, diejenigen mit den größten Restmengen getrennt gesammelt. Hierzu werden diese in einem kleinen separaten Plastikbeutel, der im Abfallsammelbehälter eingehängt ist, abgelegt.
2. Hiervon werden mindestens 3 Vials für die folgenden Messungen ausgewählt. Das Ziel der Messungen besteht im Nachweis der Aktivität eines alphastrahlenden Radionuklids, das entweder direkt freigabebestimmend ist, oder aus dessen Aktivitätsgehalt die Aktivität des freigabebestimmenden Radionuklids abgeleitet werden soll (im Fall des Xofigo® Messung des Th-227 und hieraus Ableitung des Aktivitätsgehalts von Ac-227).
3. Es wird ferner das gesamte restliche Abfallsammelgefäß einer Wägung unterzogen und die Nettomasse der Abfälle bestimmt. Alternativ kann aus der Anzahl der Anwendungen, aus welchen Abfälle im Abfallsammelgefäß enthalten sind, und einer mittleren Masse der Verbrauchsmaterialien je Anwendung eine repräsentative Masse für den restlichen Abfall bestimmt werden.
4. Der Arbeitsbereich wird mit einer Folie gegen Kontamination geschützt. Hierauf wird ein dünnes Papierhandtuch ausgebreitet, das anschließend zur Aufnahme der Flüssigkeit dient.
5. Die ausgewählten Vials werden auf das Papierhandtuch möglichst vollständig ausgeleert, wobei die Flüssigkeit insgesamt über eine der Messfläche des Messgeräts möglichst entsprechende Fläche (z. B. 100 cm²) mittig verteilt wird. Es wird ein Eintrocknen der Flüssigkeit für mind. 1 h abgewartet.
6. Auf dem Papierhandtuch erfolgt eine Messung mit dem Kontaminationsmonitor. Hierbei wird der Abstand zwischen Papierhandtuch und Messgerät so gering wie möglich gehalten. Es wird die Anzeige im Alphakanal ausgewertet.
7. Die Zählrate wird in die Aktivität des alphastrahlenden Radionuklids umgerechnet, wobei gem. Abschnitt 4.1.5 sowie Tabelle 11 mit dem Kompensationsfaktor 2 multipliziert wird, um der in den in Abschnitt 4 beschriebenen Experimenten ermittelten Selbstabschirmung von 0,5 Rechnung zu tragen. Auf diese Weise erhält man einen Wert für die Gesamtaktivität je Vial.
8. Die Werte der Gesamtaktivität für alle Vials, deren Restflüssigkeiten einer Messung unterzogen wurden, werden ermittelt und durch die Anzahl der Vials dividiert. Dies stellt einen repräsentativen Wert für die Aktivität in der Restflüssigkeit der Vials jeder Anwendung dar. Um die Aktivität in Restmengen in der Düse von Spritzen und auf Handschuhen und anderen Verbrauchsmaterialien zu berücksichtigen, wird dieser Wert mit 1,1 multipliziert (10 % Zuschlag, vgl. u. a. Abschnitt 3.1.18).
9. Die so berechnete mittlere Aktivität, die in der Restflüssigkeit und auf den Verbrauchsmaterialien einer Anwendung enthalten ist, wird mit der Anzahl der Anwendungen, aus welchen Abfälle im Abfallsammelbehälter vereinigt sind multipliziert. Dieser Aktivitätswert wird durch die in Schritt 3 bestimmte Masse des Abfalls im Abfallsammelgefäß dividiert.
10. Der so ermittelte Wert der massenbezogenen Aktivität wird mit dem Freigabewert für das Radionuklid gem. Anl. 4 Tab. 1 StrlSchV verglichen, wobei die jeweilige Freigabeoption (z. B. Sp. 3 für die uneingeschränkte Freigabe oder Sp. 9 für die Freigabe zur Beseitigung durch Verbrennung) berücksichtigt wird. Überschreitet die massenbezogene Aktivität nicht den Freigabewert, so kann die gesamte Abfallmenge im Abfallsammelgefäß freigegeben werden.

Falls es sich dagegen um eine Darreichungsform handelt, bei welcher die Menge an Restflüssigkeiten sehr gering ist, ist der in Abschnitt 5.1.2 gegebenen Darstellung zu folgen.

5.1.5 Empfehlung der SSK

Die SSK erarbeitete während der Durchführung dieses Forschungsvorhabens eine Empfehlung zur Anwendung von Nukliden in der Nukleartherapie, die im Hinblick auf die dort auch angesprochene Freigabe von Abfällen aus der Anwendung von Radionukliden einen Querbezug zu diesem Forschungsvorhaben hat. Im Sommer 2022 waren die Arbeiten an der SSK-Empfehlung noch nicht abgeschlossen. Im Jahresbericht 2020 der SSK [SSK 21] wird hierzu ausgeführt:

„Nuklide in der Nukleartherapie

In der Nuklearmedizin ist eine rasante Entwicklung neuer medizinischer Therapieverfahren zu beobachten, z. B. in der Radioimmuntherapie mit ihren vielfältigen Möglichkeiten, Radionuklide mittels spezifischer Antikörper im Tumorgewebe anzureichern. Radioaktive Stoffe werden hierbei sowohl im Rahmen etablierter, arzneimittelrechtlich zugelassener Therapieverfahren angewendet als auch in der medizinischen Forschung. Daneben erfolgen aber auch individuelle Heilversuche an Patientinnen und Patienten, für die keine etablierte Therapieoption mehr besteht. ... Das BMU hat die SSK daher am 5. Februar 2019 um Erarbeitung einer Zusammenstellung aller aktuell in der Nuklearmedizin therapeutisch angewendeten radioaktiven Stoffe gebeten. Dabei sollen u. a. Angaben zu Tumorentität und Art der Behandlung, zum Nuklid – und ggf. auftretenden Begleitnukliden sowie zu typischen Bereichen der individuell zu applizierenden Aktivität gemacht und eine Bewertung vorgenommen werden, inwieweit es sich um ein Therapieverfahren handelt, das im Rahmen der medizinischen Forschung erfolgt. ... Die Arbeitsgruppe „Nuklide in der Nukleartherapie“ (A229) hat 2020 in sechs Sitzungen einen ersten Teilentwurf einer Empfehlung erstellt und wird die Beratungen 2021 fortsetzen.“

Diese Beratungen wurden in den Jahren 2021 und 2022 in der SSK und dem zuständigen Ausschuss wie geplant fortgesetzt, und es wird auch auf die Freigabe der Abfälle aus den Anwendungen eingegangen. Es wird hierbei dargestellt, dass die Bezugsmasse für die Aktivität bei der Bestimmung der massenbezogenen Aktivitätswerte durch die gesamte Abfallmenge gemeinsam gebildet wird, dass also alle kontaminierten Materialien, welche neben dem Vial, in dem die Aktivität geliefert wird, während des jeweiligen Arbeitsprozesses anfallen, einschließlich Begleitmaterialien wie Tupfer, Spritzen, Kanülen, Unterlagen und Handschuhe als Bezugsmasse zu zählen sind. Die Entnahme oder anderweitig getrennte Behandlung möglicher Flüssigkeitsreste wird nicht unterstellt, sondern es wird davon ausgegangen, dass die Abfälle im Ganzen in einem Sammelgefäß gesammelt und entsorgt werden, was dem Abfall-Management im Gesundheitswesen (Krankenhaus oder im niedergelassenen Bereich) entspricht. Bei der Berechnung der massenbezogenen Aktivität als Vergleichskriterium für die Prüfung der Einhaltung von Freigabewerten wird der Quotient aus der Aktivität des freizugebenden Abfalls und dessen gesamter Masse gebildet. Evtl. vorhandene kleine Restflüssigkeitsmengen werden also nicht separat behandelt.

Die Vorgehensweise, die der aktuell in Erarbeitung befindlichen SSK-Empfehlung zugrunde liegt, unterscheidet sich somit nicht von der hier unterstellten Vorgehensweise, insbesondere bezüglich der gemeinsamen Behandlung von Flüssigkeitsresten zusammen mit dem sonstigen Abfall in Bezug auf die Berechnung der massenbezogenen Aktivität. Die SSK-Empfehlung steht somit im Einklang zu den drei Handlungsanleitungen in den Abschnitten 5.1.2, 5.1.3 und 5.1.4.

6 Danksagung

Wir bedanken uns sehr herzlich bei der Bayer AG, insbesondere beim Strahlenschutzbevollmächtigten Dr. Kristian Wittke, für die freundliche Bereitstellung des Berichts „Versuche zur Optimierung der Strahlenschutzmaßnahmen: Einfluss der Abschirmung von Verbrauchsmaterialien bei Kontaminationsprüfungen von Flüssigkeiten im Umgang mit Alphastrahlern am Beispiel von Radium-223“ [BAY 21]. Die darin beschriebenen Versuche und deren Ergebnisse stellen eine wichtige Ergänzung zu den Versuchen dar, die im BS-eigenen Kontrollbereich durchgeführt werden konnten.

Wir bedanken uns ebenfalls sehr herzlich beim Universitätsklinikum Aachen, insbesondere Frau Katerina Eigner Henke, Leiterin der Qualitätssicherung Radiopharmazie Klinik für Nuklearmedizin, für die freundliche Überlassung von Restmengen des Radiopharmakons Lutathera® für die Durchführung der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien.

7 Literaturverzeichnis

[BAY 16]	Bayer AG Residual Ac-227 in Xofigo® product, Presentation at the Radiation Safety Committee 28. Juni 2016
[BAY 16A]	BAYER VITAL GMBH ABFALLMERKBLATT ZUM UMGANG MIT XOFIGO®-ABFÄLLEN BAYER VITAL GMBH, BERLIN, STAND 06/2016
[BAY 17]	BAYER AG XOFIGO® 1100 kBQ/ML INJEKTIONS-LÖSUNG FACHINFORMATION, BAYER AG, STAND APRIL 2017
[BAY 21]	Bayer AG Versuche zur Optimierung der Strahlenschutzmaßnahmen: Einfluss der Abschirmung von Verbrauchsmaterialien bei Kontaminationsprüfungen von Flüssigkeiten im Umgang mit Alphastrahlern am Beispiel von Radium-223 Berlin, Juni 2021
[BS 21A]	Brenk Systemplanung GmbH Qualifizierung von Methoden zur Vereinfachung der Freigabeentscheidung in der Nuklearmedizin unter Gewährleistung der Übertragbarkeit auf andere Anwendungsgebiete Bericht zu AP 1: Analyse der Randbedingungen, Aachen
[BS 21B]	Brenk Systemplanung GmbH Qualifizierung von Methoden zur Vereinfachung der Freigabeentscheidung in der Nuklearmedizin unter Gewährleistung der Übertragbarkeit auf andere Anwendungsgebiete Bericht zu AP 2: Bestimmung eines optimierten und rechtskonformen Freigabemessverfahrens, Aachen, 06.08.2021
[DIA 15]	DIALINK LIFE SCIENCES MANAGEMENT GmbH Entsorgung von Xofigo®-Abfällen Zwischenbericht zur Recherche im Auftrag der Bayer Vital GmbH DIALINK LIFE SCIENCES MANAGEMENT GmbH, Berlin, 23. Juli 2015
[DIN 17]	Deutsches Institut für Normung e. V. DIN ISO 7503: Bestimmung der Radioaktivität - Messung und Bewertung der Oberflächenkontamination Teil 1: Allgemeine Grundlagen, Ausgabe 2017-12 Teil 2: Teil 2: Wischtest, Ausgabe 2017-12 Teil 3: Gerätekalibrierung, Ausgabe 2017-12 Beuth-Verlag, Berlin
[DIN 18]	Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 25457: Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Stoffen und kerntechnischen Anlagenteilen: Teil 1; Grundlagen, Ausgabe 2014-12 Teil 4: Kontaminierter und aktivierter Metallschrott, Ausgabe 2013-04 Teil 6: Bauschutt und Gebäude, Ausgabe 2018-07 Teil 7: Bodenflächen und Bodenaushub, Ausgabe 2017-08 Beuth-Verlag, Berlin

[DIN 20]	Deutsches Institut für Normung e. V. DIN ISO 11929: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen – Teil 1: Elementare Anwendungen, Ausgabe 2020-03 Beuth-Verlag, Berlin
[IAE 05]	International Atomic Energy Agency Derivation of Activity Concentration Values for Exclusion, Exemption and Clearance Safety Report Series No. 44, Vienna, 2005
[JOH 16]	Johnson, T.E.; Birky, B. K. Health Physics and Radiological Health Wolters Kluwer, 2016, ISBN 978-1-60913-419-8
[LAG 15]	Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Abfall (LAGA) Vollzugshilfe zur Entsorgung von Abfällen aus Einrichtungen des Gesundheitsdienstes Mitteilung der Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Abfall (LAGA) 18, Stand Januar 2015
[LFU 19]	Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie Leistungsbeschreibung zum Vorhaben/Projekt „Qualifizierung von Methoden zur Vereinfachung der Freigabeentscheidung in der Nuklearmedizin unter Gewährleistung der Übertragbarkeit auf andere Anwendungsgebiete“ November 2019
[NIS 21]	National Institute of Standards and Technology Online-Datenbank zu Massenschwächungskoeffizienten, hier Iod: https://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ElemTab/z53.html Abgerufen am 23.11.2021
[SSK 17]	Strahlenschutzkommission Berechnungsgrundlage für die Ermittlung von Körper-Äquivalentdosen bei äußerer Strahlenexposition Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 43, 3. überarbeitete und erweiterte Auflage, ISBN 978-3-943422-43-6, 2017
[SSK 21]	Strahlenschutzkommission Jahresbericht 2020
[SSV 17]	Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) Strahlenschutzverordnung vom 20. Juli 2001 (BGBl. I S. 1714; 2002 I S. 1459), die zuletzt durch Artikel 6 des Gesetzes vom 27. Januar 2017 (BGBl. I S. 114) geändert worden ist
[TCP 16]	T&C Packaging International T&C PI-test certificate 160546 April 4, 2016

8 Anhang A: Monte-Carlo-Simulationen für die Messungen mit Kontaminationsmonitoren

8.1.1 Vorgehensweise und Begründung für die Monte-Carlo-Simulationen

Die normale Vorgehensweise bei der Kalibrierung eines Kontaminationsmonitors für ein Messobjekt bei bekannter Zusammensetzung und Höhe der Aktivität besteht in der möglichst mehrfachen Durchführung der Messung in gegebener Messgeometrie. Das Verhältnis der bekannten Aktivität zur Nettozählrate stellt dann den gesuchten Kalibrierfaktor für die gegebene Messgeometrie dar.

Im vorliegenden Fall wurde dieser Ansatz in den Versuchen, die im Hauptteil dieses Berichtes beschrieben sind, zwar auch verfolgt, wegen der zum Teil niedrigen Energien der Beta-Teilchen und Photonen und wegen der nur in gewissen Grenzen vorzugebenden geometrischen Bedingungen für das Messgut wurden jedoch zusätzlich die im Folgenden dargestellten Simulationen für die Effizienz eines Kontaminationsmonitors bei Variation von relevanten Einzelparametern durchgeführt. Hierdurch sollte ein tieferes Verständnis für die Korrektheit der im Hauptteil des Berichtes dargestellten Messungen und für die Grenzen, innerhalb derer die Messergebnisse als gültig angesehen werden können, geschaffen werden. Ferner bilden die Simulationen auch die Basis für die vollständige Betrachtung der Typ-B-Messunsicherheiten.

In den folgenden Abschnitten werden die folgenden Abhängigkeiten der Effizienz eines Kontaminationsmonitors dargestellt:

- Abhängigkeit der Effizienz vom Untergrund, auf dem sich das Messgut befindet (Abschnitt 8.1.3),
- Abhängigkeit der Effizienz vom Abstand zwischen Messgut und Detektor (Abschnitt 8.1.4),
- Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke einer Abschirmung aus leichtem Material, z. B. Handschuh (Abschnitt 8.1.5),
- Abhängigkeit der Effizienz vom Winkel, unter dem bei Beta-Strahlern das Elektron vom Messgut ausgesandt wird und hierbei gegebenenfalls in Abschirmungsmaterial mit Materie wechselwirkt (Abschnitt 8.1.6),
- Einfluss benachbarter Aktivität auf das Messergebnis (Abschnitt 8.1.7) und
- Einfluss der Position einer lokalisierten Aktivität unterhalb des Detektors (Abschnitt 8.1.8).

Alle Darstellungen erfolgen jeweils als Funktion des Abstands zwischen Messgut und Detektor und für verschiedene Energien der Photonen und Elektronen. Nach der Darstellung der Ergebnisse für einzelne Strahlungsarten und einzelne Energien werden sie für die beiden im Hauptteil des Berichts untersuchten Radionuklide Lu-177 und I-125 insgesamt dargestellt.

Ferner wird der Einfluss von Aktivität, die sich in geringem Abstand zur Messanordnung befindet, auf den Messeffekt untersucht.

Zur Ausführung der Simulation werden Modelle im Rahmen der Software MCNP (Monte-Carlo N-Particle Transport Code) erstellt und ausgewertet. Es kommt die aktuelle Version MCNP6.2 zum Einsatz.

8.1.2 Aufbau des MCNP-Modells

Alle im Folgenden dargestellten Simulationen beruhen auf dem detaillierten Modell eines Kontaminationsmonitors vom Typ CoMo 170, der den Aufbau und die Abmessungen der einzelnen Komponenten gem. Abbildung 11 aufweist.

- Der eigentliche Kontaminationsmonitor besteht aus den Komponenten:
- Szintillatormaterial PET, ca. 1 mm Dicke
- Zinksulfid-Schicht (ZnS) auf der Vorderseite, ca. 10 µm Dicke

- Mylarfolie zum Abschluss nach außen, ca. 2 µm Dicke.
- Das Messgut, in der Abbildung als „Quellbereich“ bezeichnet, befindet sich auf einem Tisch aus einem dichten Material, im Modell Eisen. Der Tisch führt zu einer Reflexion und ist daher Bestandteil der Messgeometrie. Die Dicke des eigentlichen Messguts ist für die Messgeometrie ohne Bedeutung.
- Über dem Messgut befindet sich gegebenenfalls abschirmendes Material mit geringer Dichte (Handschuh, Papier).
- Zwischen dem Messgut und dem abschirmenden Material befindet sich Luft.

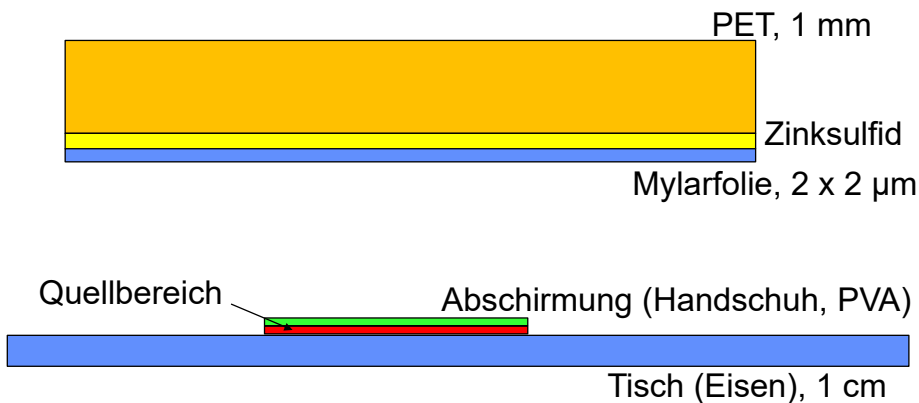


Abbildung 11: Aufbau des Modells für die Messgeometrie und den Detektor (schematisch, nicht maßstäblich)

Die Besonderheiten der Abstandsbestimmung zwischen Detektor und Messgut sind in Abbildung 12 dargestellt. Aufgrund der Tatsache, dass jeder Kontaminationsmonitor zum Schutz der Abdeckfolie (Mylarfolie), welche die Lichtdichtheit bei Szintillationsdetektoren bzw. die Gasdichtheit bei gasgefüllten proportionalen Zählrohren herstellt, mit kleinen Abstandshaltern ausgestattet ist und dass die Folien außerdem mit einer filigranen Gitterstruktur gestützt werden, ist der Mindestabstand zwischen Messgut und Detektoroberfläche bei etwa 2 mm festgelegt. Alle folgenden Darstellungen beginnen daher bei einem Abstand 2 mm, welcher bei einem sehr dünnen Messgut einer „Kontaktmessung“ entspricht. Ein geringerer Abstand zwischen Detektor und Messgut ist in der Praxis nicht erzielbar.

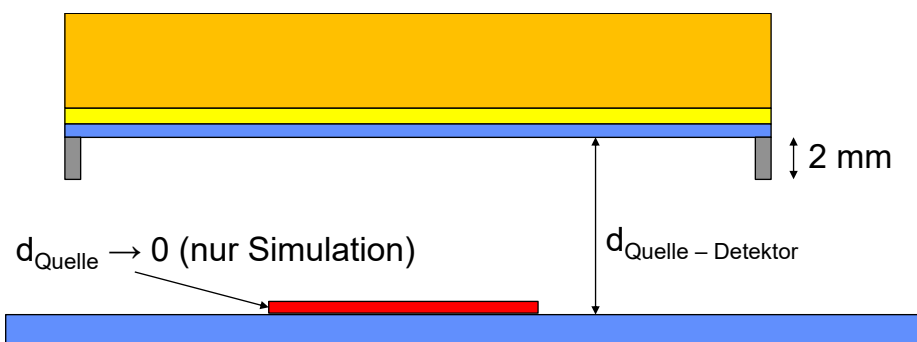


Abbildung 12: Erläuterung der Abstände bei der Messgeometrie (schematisch, nicht maßstäblich)

Bei der MCNP-Simulation steht einerseits die Nachverfolgung der Ausbreitung von Photonen und Elektronen von der Quelle (dem Messgut) über verschiedene Wechselwirkungen in Luft und im abschirmenden Material bis hin zum Detektor und andererseits die Energiedeposition im Detektormaterial im Vordergrund. Hierzu werden das PET-Material und die ZnS-Folie als Tally vom Typ 8 definiert, bei welchem die Energieverteilung von Impulsen in einem Detektor durch MCNP ermittelt und ausgegeben wird.

Alle übrigen Materialien und geometrischen Randbedingungen werden in möglichst exakter Übereinstimmung mit realen Gegebenheiten gewählt.

Da aber verschiedene konstruktive Details und insbesondere der Einfluss der elektronischen Signalverarbeitung nicht nachgebildet werden können, handelt es sich bei der Modellierung insgesamt um einen teilweise idealisierten Kontaminationsmonitor. Teil der (proprietären) Algorithmen der elektronischen Signalverarbeitung ist u. a. auch die Abschneideenergie oder Cutoff-Energie, d. h. die minimale Energie, oberhalb derer einlaufende Signale des Detektors ausgewertet werden, während Signale mit niedrigerer Energie als Rauschen interpretiert und ausgesondert werden. In den im Folgenden beschriebenen Simulationen werden für den Wert der Abschneideenergie, der einen nicht geringen Einfluss auf das Messergebnis hat, plausible Werte eingesetzt. Bekannt ist, dass die Abschneideenergie Werte von weniger als 10 keV annehmen kann. Im vorliegenden Fall wird ein Wert von 8 keV verwendet.

8.1.3 Abhängigkeit der Effizienz vom Untergrund, auf dem sich das Messgut befindet

Die Rückstreuung vom Untergrund, auf dem sich das (im vorliegenden Fall dünne) Messgut befindet, ist für Elektronen nicht zu vernachlässigen. Dies wird durch die Darstellung in

Abbildung 13 illustriert, welche die Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen von 100 keV mit und ohne Untergrund unter dem Messgut zeigt. Die rote und die blaue Kurve stellen die Effizienz mit und ohne umgebende Luft ohne Untergrund (Tisch) als Funktion des Abstands dar. Zwischen beiden ist nur ein sehr geringer Unterschied zu erkennen, der abschirmende Einfluss der Luft ist bei Elektronen dieser Energie praktisch zu vernachlässigen. Die grüne Kurve stellt dieselbe Situation (Luft) mit einem darunter befindlichen Untergrund aus einem dichten Medium (Tisch) dar. Der deutliche Anstieg der Effizienz zeigt die Reflexion der Elektronen an diesem Material in die Richtung des Detektors.

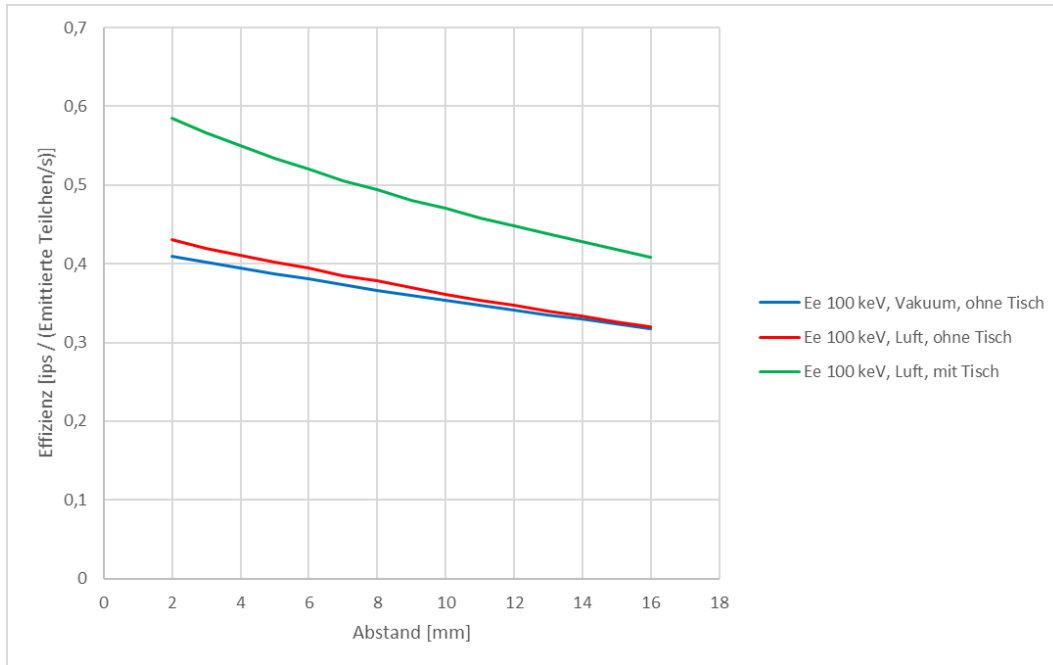


Abbildung 13: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen von 100 keV mit und ohne Untergrund unter dem Messgut, ohne Berücksichtigung der Abschneideenergie im Detektor

Für Photonen ist dieser Effekt von weit geringerer Bedeutung. Abbildung 14 zeigt in diesem Zusammenhang die analoge Ausführung des MCNP-Modells für monoenergetische Photonen von 50 keV. Die Farben der Kurven sind analog zu Abbildung 13 gewählt.

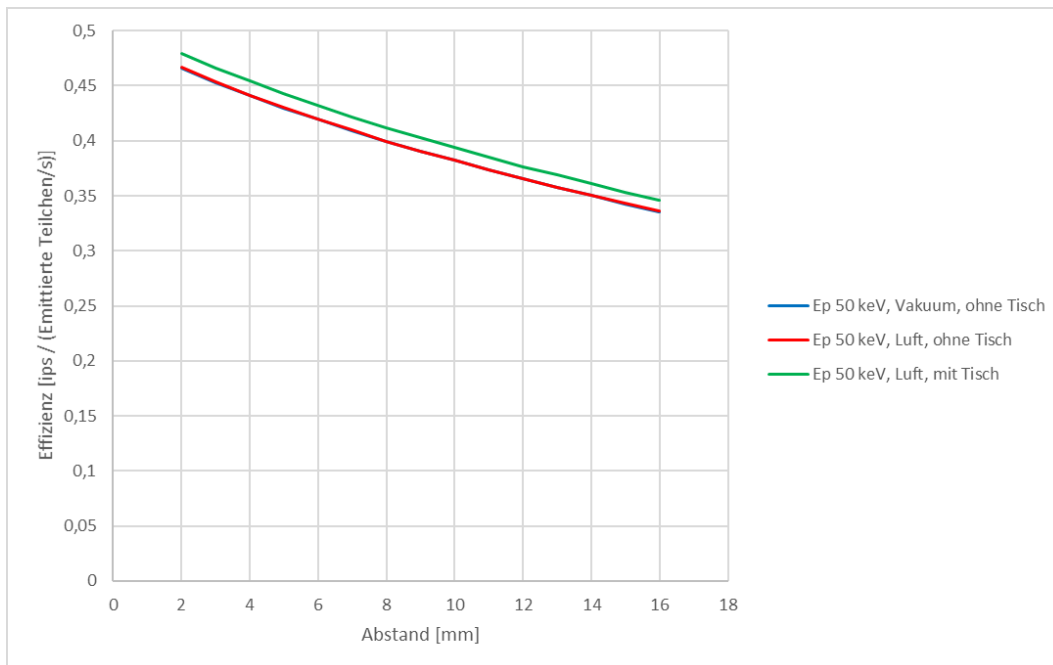


Abbildung 14: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen von 50 keV mit und ohne Untergrund unter dem Messgut, ohne Berücksichtigung der Abschneideenergie im Detektor

8.1.4 Abhängigkeit der Effizienz vom Abstand zwischen Messgut und Detektor

Die Diagramme in Abschnitt 8.1.3 geben bereits eine Abhängigkeit der Effizienz vom Abstand zwischen Messgut und Detektor an, jedoch nur für Elektronen und Photonen einer bestimmten Energie. Abbildung 15 stellt demgegenüber den Verlauf der Effizienz als Funktion des Abstands zwischen Messgut und Detektor für monoenergetische Elektronen verschiedener Energien dar. Die gelbe Kurve zeigt den Verlauf für Elektronen von 50 keV und führt zur niedrigsten Effizienz, die Kurven für 300 keV bis 700 keV fallen aufeinander und führen zur höchsten Effizienz. Das obere Teilbild zeigt die absoluten Werte der Effizienz, das untere Teilbild zeigt den Verlauf relativ zur jeweiligen Effizienz bei „Kontaktmessung“. Die durch Auswertelektronik des Detektors verwendete Abschneideenergie wurde auf 1 keV gesetzt.

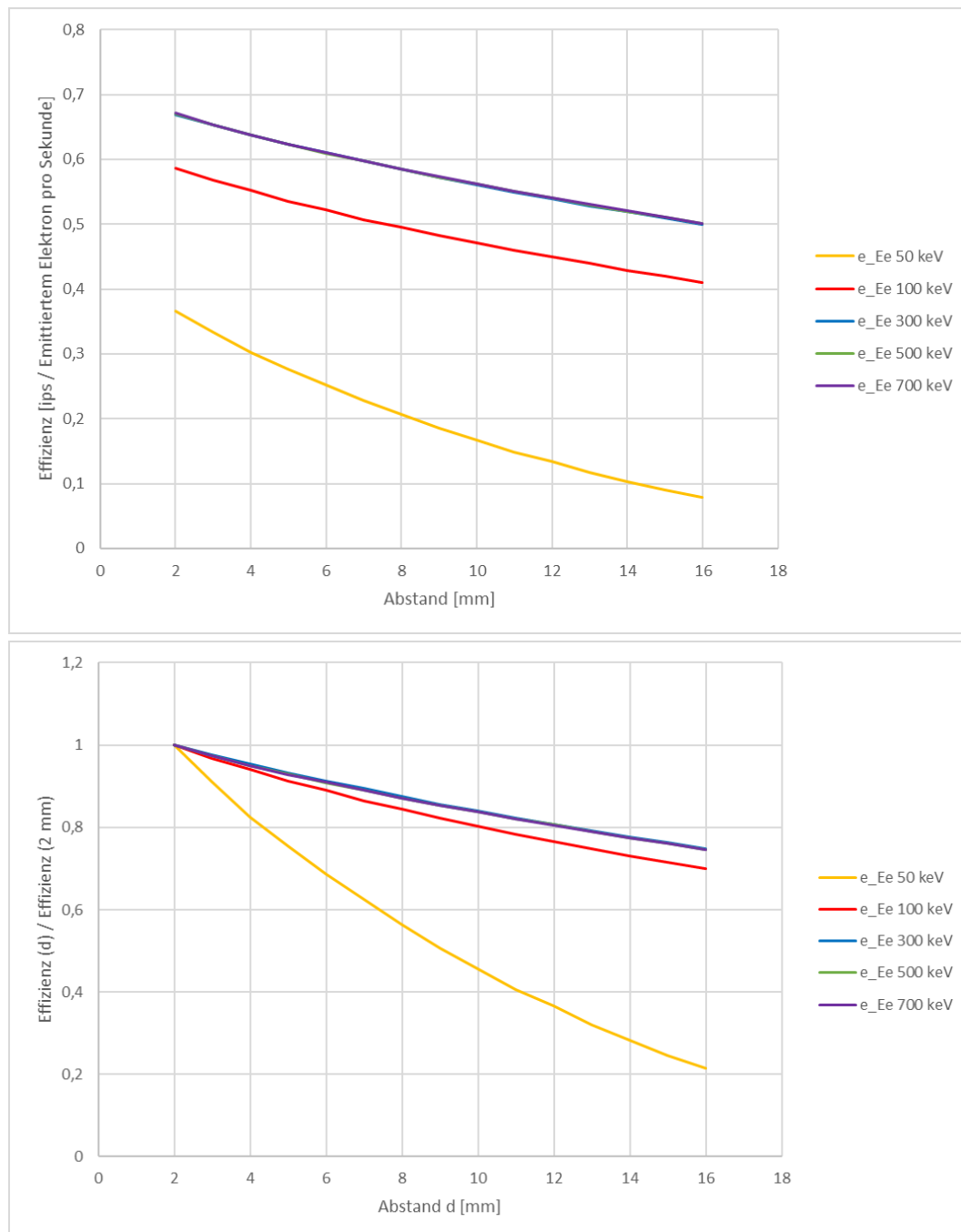


Abbildung 15: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen zwischen 50 keV und 700 keV (oben in absoluten Werten, unten in relativen Werten)

Die analogen Verläufe für monoenergetische Photonen innerhalb desselben Energiebereichs ist in Abbildung 16 dargestellt. Die durch Auswertelektronik des Detektors verwendete Abschneideenergie wurde auf 1 keV gesetzt. Beim Vergleich beider Abbildungen wird zum einen die erheblich geringere Effizienz für Photonen gegenüber Elektronen gleicher Energie deutlich, ferner fällt auf, dass die Energiedeposition im Detektor im Falle der Photonen desto geringer wird, je höher die Energie der Photonen ist. Da die Abschirmung in Luft für Photonen im genannten Energiebereich angesichts der kurzen Distanzen zwischen Messgut und Detektor praktisch keine Rolle spielt, fallen die relativen Kurvenverläufe im gesamten Energiebereich aufeinander, wie das untere Teilbild zeigt.

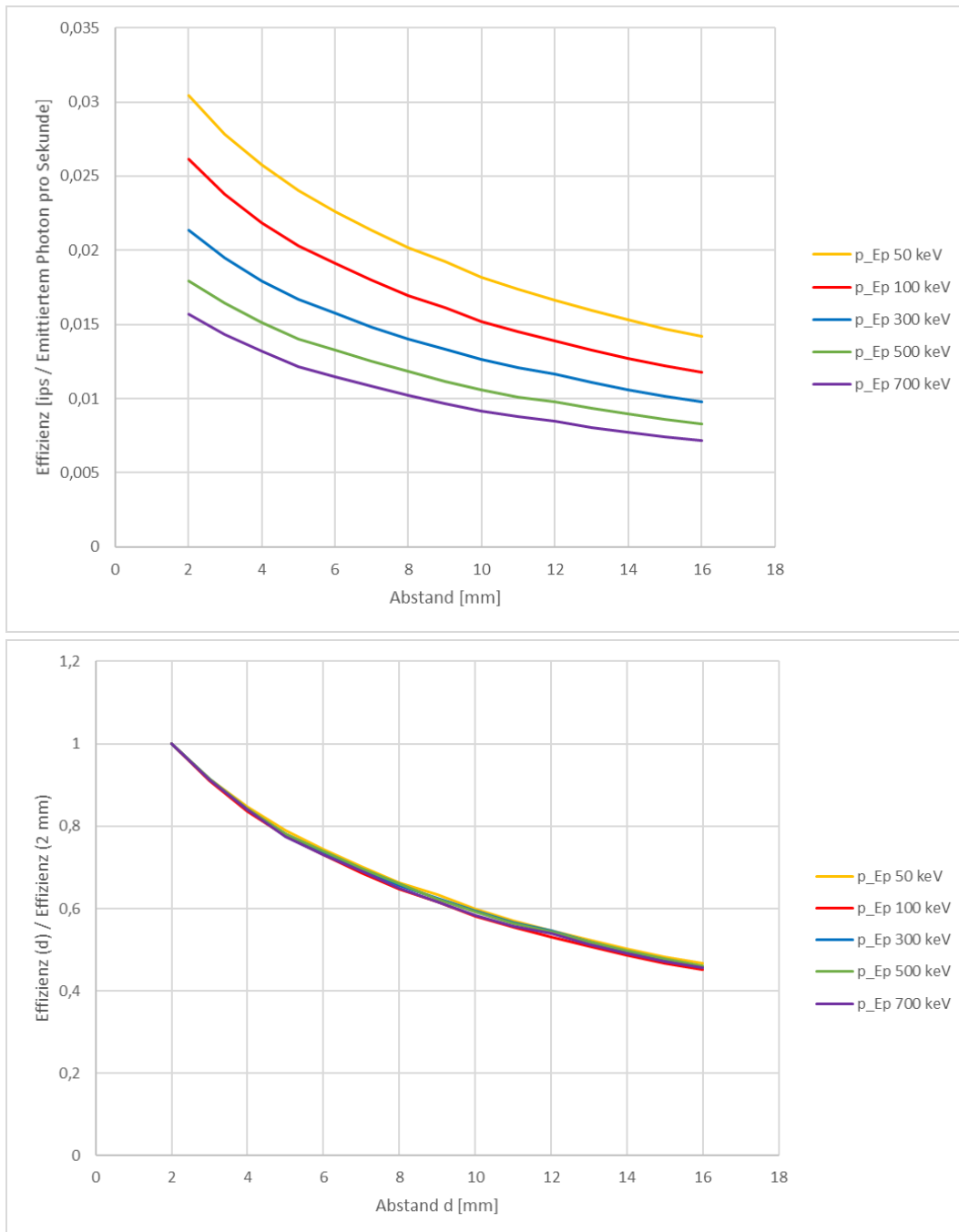


Abbildung 16: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen zwischen 50 keV und 700 keV (oben in absoluten Werten, unten in relativen Werten)

8.1.5 Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke einer Abschirmschicht

Die Abhängigkeitseffizienz von der Dicke einer Abschirmschicht von leichtem Material mit Dicken zwischen 0 und 200 μm ist für monoenergetische Elektronen von 100, 300 und 500 keV in Abbildung 17 in drei Teilbildern, und für monoenergetische Photonen von 30, 100 und 500 keV in Abbildung 18 in drei ebenfalls Teilbildern gezeigt.

Bei der Darstellung für Elektronen in Abbildung 17 fällt auf, dass für Elektronen mit Energien im Bereich von 100 keV und darunter bereits sehr dünne Abschirmungen von 50 μm zu einer erheblichen Reduktion der Effizienz und ab ca. 100 μm praktisch zur Effizienz 0 führen. Einen weit geringeren Einfluss der Dicke der Abschirmung zeigt sich für Elektronen von 300 keV und 500 keV. Bei 300 keV reduziert eine Abschirmung von 100 μm aus leichtem Material die Effizienz um ca. ein Viertel, bei 500 keV nur noch um ca. 10 %. Gleichzeitig fällt auf, dass der Verlauf der Effizienz mit größeren Abstand steiler abfällt, wenn sich kein Abschirmmaterial zwischen Messgut und Detektor befindet. Dieser Effekt ist ab ca. 300 keV Elektronenenergie deutlich und wird bei höheren Elektronenenergien ausgeprägter. Es handelt sich hier bei um einen Effekt der Streuung von Elektronen im Abschirmmaterial in Richtung des Detektors, welcher ohne Anwesenheit von Abschirmmaterial nicht auftritt (näherungsweise vergleichbar mit dem Aufbaufaktor in Materialien bei Photonenstrahlung). Auf diesen Effekt wird separat in Abschnitt 8.1.6 eingegangen, auch wenn er für das Verständnis der Kalibrierung des Messgeräts für die im Hauptteil des vorliegenden Berichts beschriebenen Messungen ohne Bedeutung ist.

Die Darstellung für Photonen in Abbildung 18 zeigt für alle hier dargestellten Energien der Photonen von 30, 100 und 500 keV einen nur sehr geringen Einfluss der Dicke des Abschirmmaterials. Für die Berechnung des absoluten Wertes der Effizienz wurde unterstellt, dass die durch die Auswerteelektronik des Detektors verwendete Abschneideenergie auf 1 keV gesetzt wird.

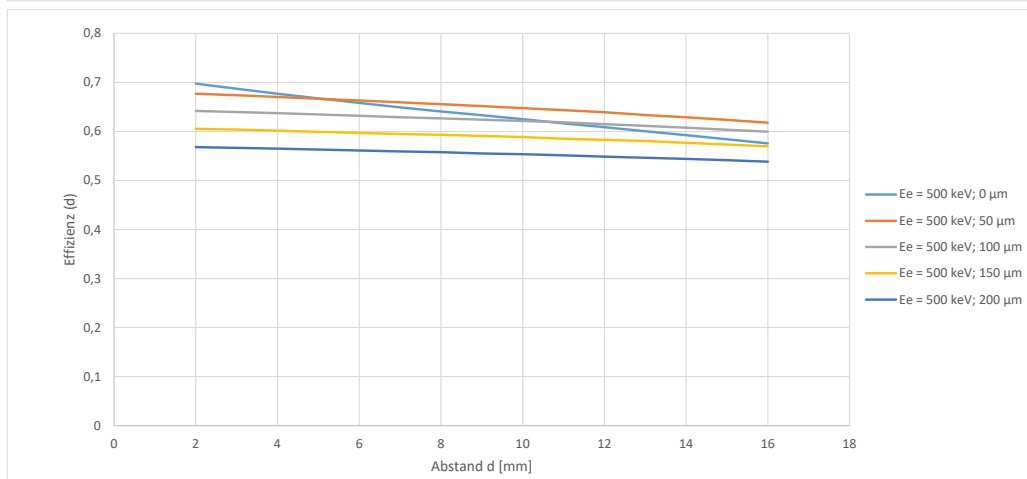
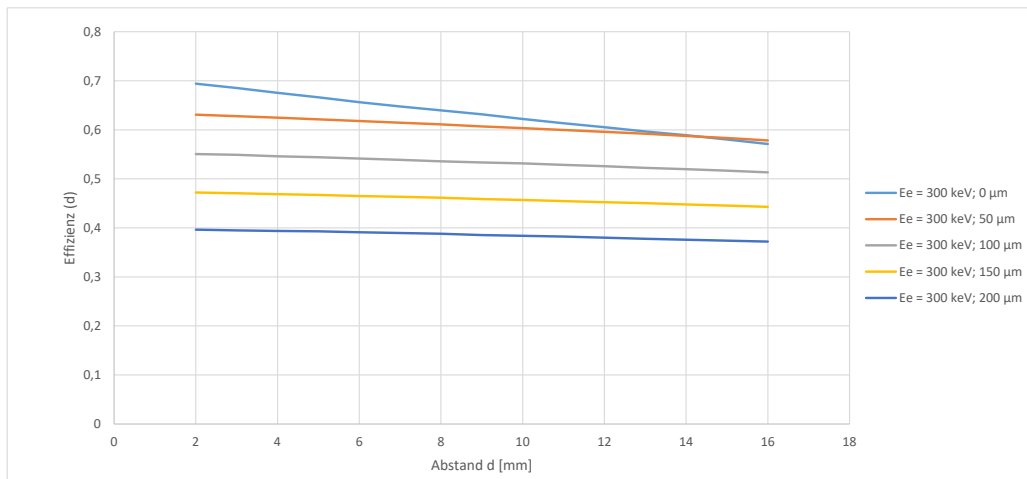
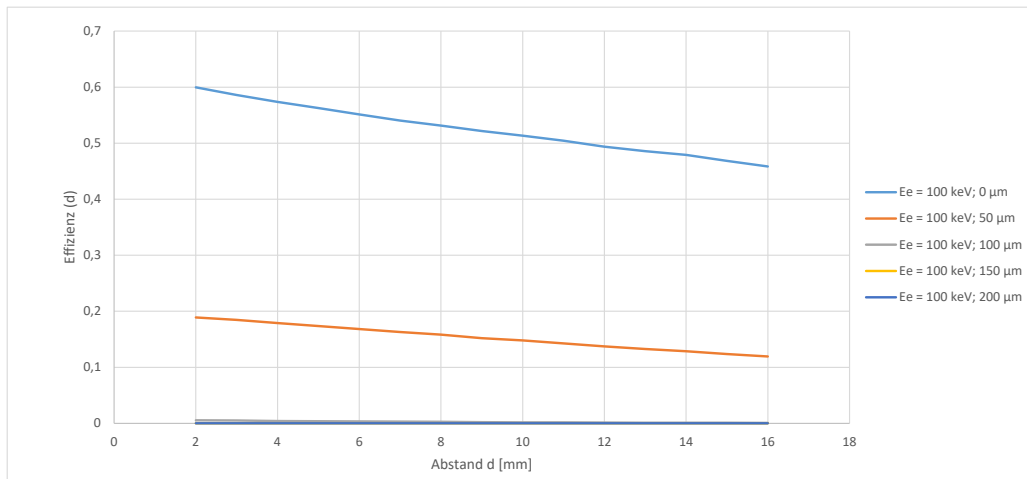


Abbildung 17: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Elektronen von 100, 300 und 500 keV für Abschirmmaterialien mit Dicken zwischen 0 und 200 μm

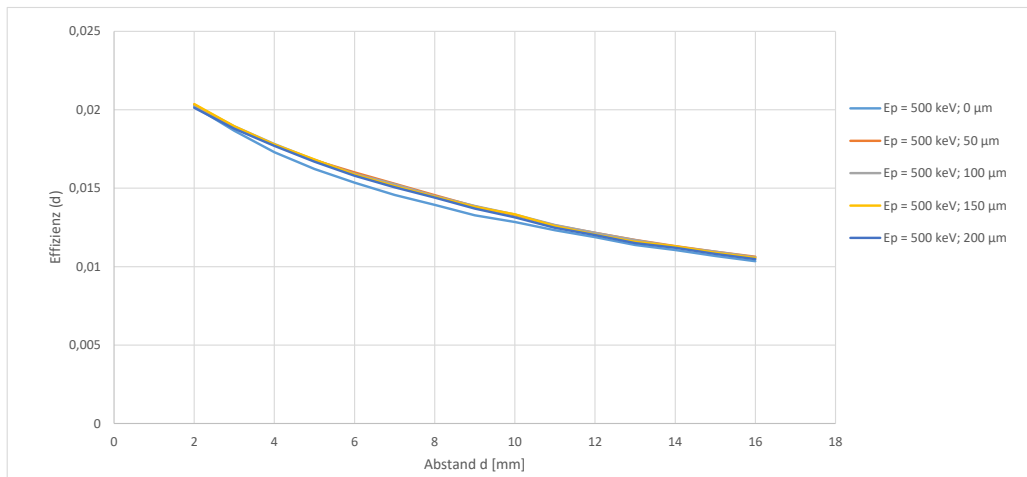
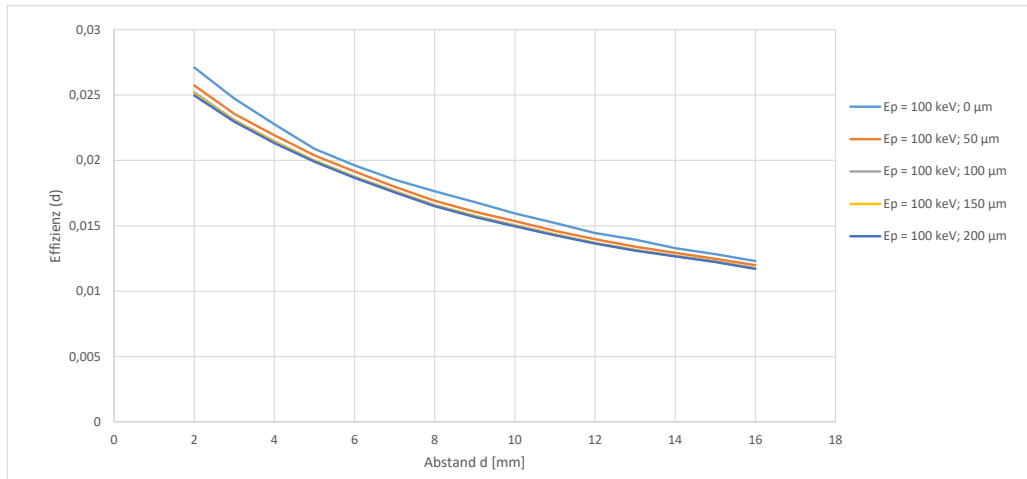
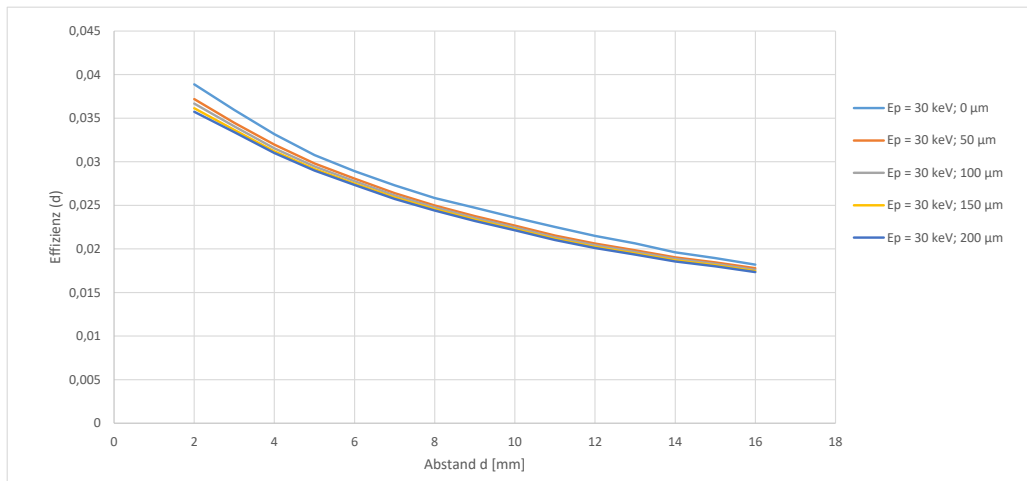


Abbildung 18: Detektoreffizienz als Funktion des Abstands zwischen Detektor und Messgut für monoenergetische Photonen von 30, 100 und 500 keV für Abschirmmaterialien zwischen 0 und 200 μm

8.1.6 Verlauf der Effizienz für Elektronen als Funktion des Abstands mit und ohne Abschirmmaterial

Zur Erklärung des in Abbildung 17 gezeigten Verhaltens für Elektronen, wonach die Effizienz ohne Material zwischen Quelle und Detektor schneller abnimmt, als wenn sich dort Material befindet, wurde eine Simulation durchgeführt, bei welcher die Flugrichtung sämtlicher Elektronen beim Verlassen der Quelle alle in demselben Winkel zur Flächennormalen des Messguts ausgerichtet waren. Sie breiten sich also von der Quelle entlang eines Kegelmantels, dessen Öffnungswinkel variiert wird (beim Winkel 0° entartet der Kegel in eine Gerade parallel zur Flächennormalen, beim Winkel 90° ist der Kegel maximal aufgeweitet, und die Elektronen breiten sich parallel zum Messgut aus, erreichen also den Detektor nie). Die Simulation wurde für monoenergetische Elektronen von 700 keV durchgeführt, was weitgehend mit dem in Abbildung 17 gezeigten 3. Fall mit 500 keV identisch ist.

Abbildung 19 zeigt das Verhalten für eine $10 \times 10 \text{ cm}^2$ große Quelle für drei ausgewählte Winkel:

- Die oberste Teilabbildung zeigt den Fall für die Emission aller Elektronen in Vorwärtsrichtung, also mit 0° Winkel zwischen Flächennormale und Flugrichtung. In diesem Fall treffen alle Elektronen den Detektor. Die Effizienz nimmt nur geringfügig mit dem Abstand ab (unterdrückter Nullpunkt auf Ordinate!) und der Einfluss der Dicke der Abschirmschicht ist gering.
- Die mittlere Teilabbildung zeigt den Fall, dass alle Elektronen in einem Winkel von 60° zur Flächennormalen emittiert werden. In diesem Fall laufen die Effizienzen für die verschiedenen Dicken der Abschirmung parallel. Keine Linie kreuzt eine benachbarte.
- Die untere Teilabbildung zeigt den Fall, dass alle Elektronen in einem Winkel von 78° zur Flächennormalen emittiert werden, also in einem sehr weit aufgeklappten Kegel. Viele Elektronen treffen in diesem Fall ohne Abschirmmaterial dazwischen nicht mehr den Detektor. Die hellblaue Linie für die Dicke 0 des Abschirmmaterials fällt steil ab. Die übrigen Linien für Abschirmmaterial verschiedener Dicke fallen jedoch deutlich weniger stark ab, weil in diesem Fall ein erheblicher Anteil von Elektronen in Richtung des Detektors gestreut wird. Jede Streuung in eine Richtung, die mit der Flächennormalen einen kleineren Winkel bildet, führt dazu, dass das Elektron den Detektor wieder treffen kann und somit zur Effizienz beiträgt.

Die gesamte Effizienz ergibt sich als Summe des Verhaltens über alle Winkel zwischen 0° und 90° zur Flächennormalen. Der wahre Verlauf der Effizienz ist daher nicht so extrem wie in der 3. Teilabbildung, sondern nimmt den in Abbildung 17 gezeigten Verlauf.

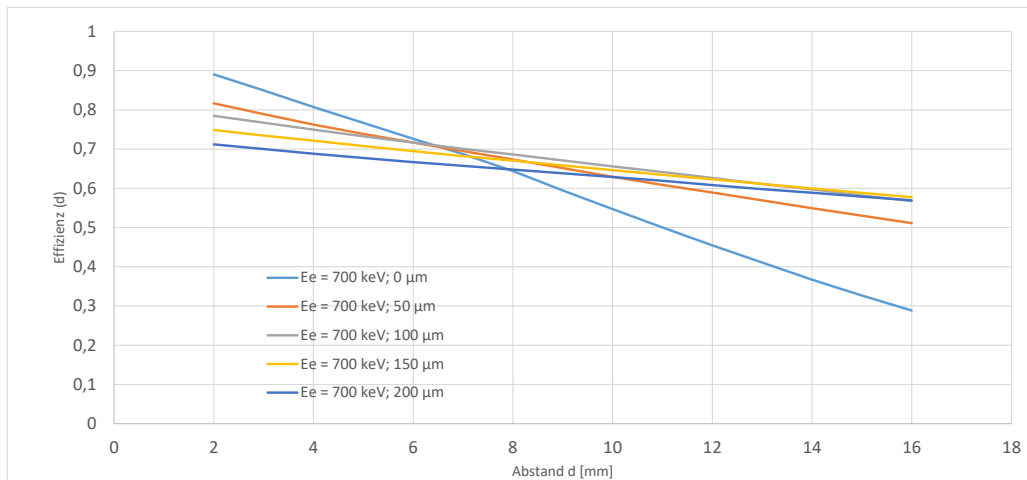
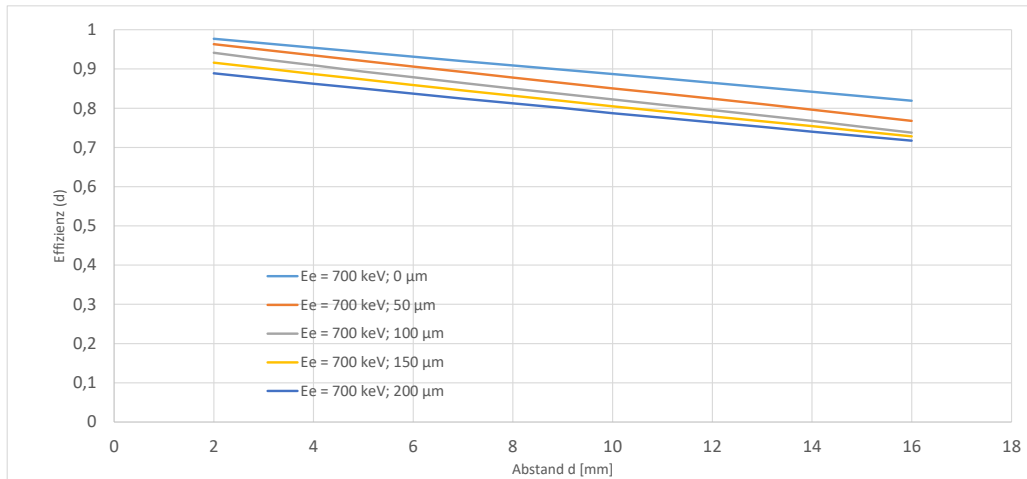
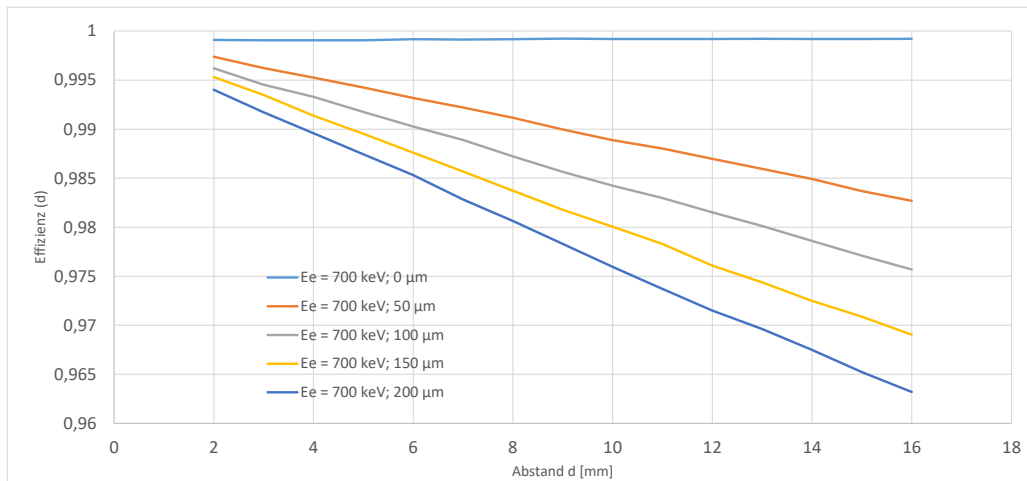


Abbildung 19: Verlauf der Effizienz für Elektronen von 700 keV, die das Messgut alle parallel im Winkel 0° (Vorwärtsrichtung), 60° und 78° zur Flächennormalen verlassen, für Dicken der Abschirmung zwischen 0 und 200 μm (unterschiedliche Ordinaten!)

8.1.7 Einfluss benachbarter Aktivität auf das Messergebnis

Der Einfluss der Einstrahlung von Aktivitäten, die sich in räumlicher Nähe auf gleichem Höhenniveau wie die eigentliche Messanordnung befinden, wird durch eine MCNP-Modellierung untersucht. Dies beschreibt beispielsweise den Fall, dass bei einer Freimessung das Messgut auf einem Tisch ausgebreitet wird und die Teile nicht einzeln zur Messung bereitgelegt werden.

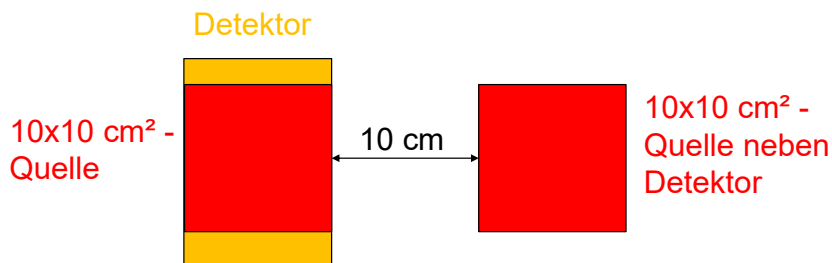


Abbildung 20: Untersuchung der Einstrahlung einer neben der Messanordnung befindlichen weiteren Quelle

Die Einstrahlung ist als umso stärker zu erwarten, je größer der Abstand zwischen Detektor und (primärem) Messgut unter dem Detektor ist, da mit steigendem Abstand der Winkel zur Oberfläche einer in der Nähe liegenden Quelle abnimmt. Für die beiden Radionuklide I-125 und Lu-177 wurden Simulationen durchgeführt, die diesen Effekt quantitativ erfassen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 12 dargestellt.

Tabelle 12: Höhe der Einstrahlung durch das primäre Messgut sowie eine benachbarte Quelle neben dem Detektor gemäß Abbildung 20

Abst. [mm]	Messeffekt [lps/Bq] für I-125			Messeffekt [lps/Bq] für Lu-177		
	aus Messgut	aus benachb. Quelle	Anteil	aus Messgut	aus benachb. Quelle	Anteil
2	0,172	0,00069	0,40 %	0,485	0,00038	0,08 %
3	0,154	0,00082	0,53 %	0,456	0,00038	0,08 %
5	0,126	0,00087	0,69 %	0,409	0,00043	0,10 %
7	0,108	0,00101	0,94 %	0,369	0,00045	0,12 %
9	0,094	0,00118	1,25 %	0,334	0,00049	0,15 %
11	0,084	0,00130	1,55 %	0,304	0,00053	0,17 %
13	0,077	0,00123	1,60 %	0,277	0,00054	0,19 %

Es wird deutlich, dass der Beitrag durch die benachbarte Quelle bei mittleren Messabständen von einigen mm den Bereich von 1 % nicht überschreitet. Die evtl. Ausbreitung des Messguts vor der Messung trägt somit nicht zur Verfälschung des Nulleffekts oder des Messeffekts bei.

8.1.8 Einfluss der Position einer lokalisierten Aktivität unterhalb des Detektors

Während in den vorherigen Simulationen jeweils eine ausgedehnte Flächenquelle unterhalb des Detektors unterstellt wurde, wird abschließend der Einfluss der Position einer lokalisierten, kleineren Quelle, jedoch mit gleicher Aktivität, unterhalb des Detektors untersucht. Abbildung 21 zeigt den Referenzfall einer Quelle von ca. 100 cm², welche mittig unter dem Detektor positioniert ist, sowie verschiedene weitere Positionen einer Quelle gleicher Aktivität, jedoch mit einer Fläche von 9 cm². Zusätzlich wurde noch der Fall einer Quelle von 25 cm² untersucht.

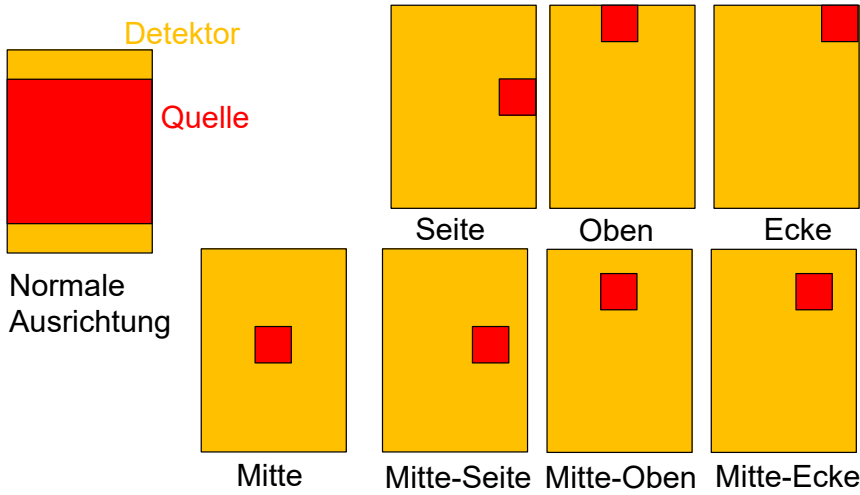


Abbildung 21: Referenzfall (links) und Variationen der Position kleiner, lokalisierter Quellen (je ca. 9 cm²) gleicher Aktivität unter dem Detektor (nicht maßstäblich)

Die Ergebnisse dieser Simulationen sind in Abbildung 22 dargestellt (bei Geometrien, die sich durch Spiegelung ergeben, ist jeweils nur ein Fall aufgetragen). Der Referenzfall ist durch die linke Säule mit 100 % gegeben, die anderen Positionen führen zu Effizienzen zwischen ca. 80 % und ca. 110 % relativ zum Referenzfall. Die höchste Effizienz ergibt sich grundsätzlich bei mittlerer Positionierung, die geringste bei einer Positionierung in einer Ecke des Detektors. Das gezeigte Beispiel ist für I-125 berechnet worden, für Lu-177 ergibt sich eine analoge Verteilung.

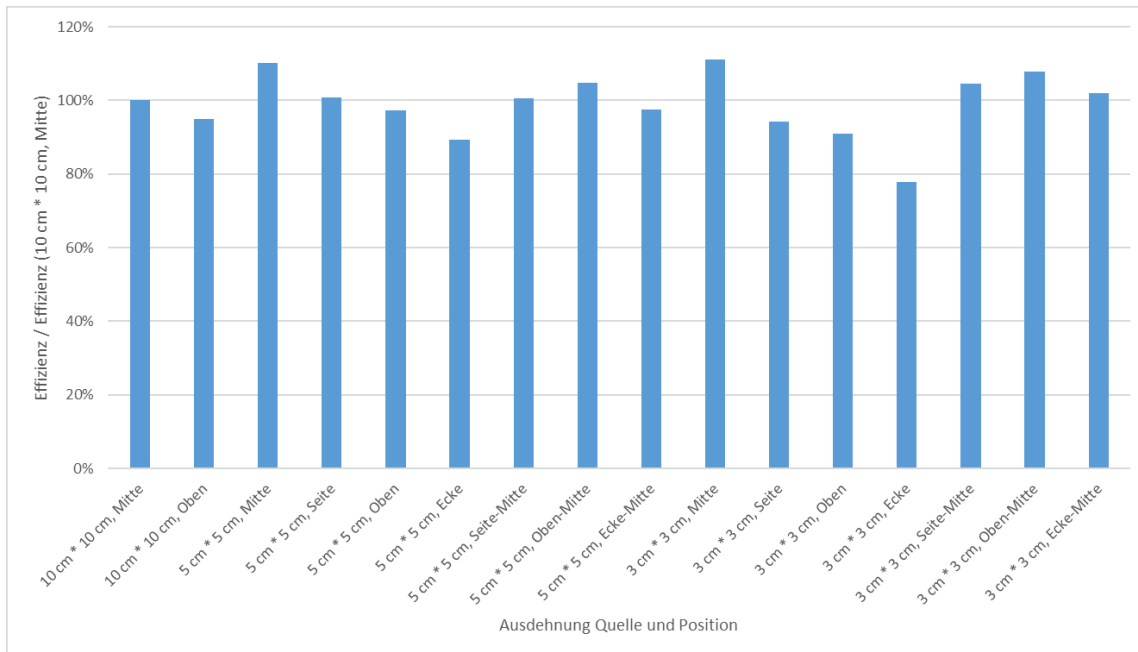


Abbildung 22: Abhängigkeit der Detektoreffizienz von der Position der kleinen, lokalisierten Quelle gemäß Abbildung 21 am Beispiel von I-125

9 Anhang B: Bewertung der Messunsicherheit

9.1.1 Vorgehensweise

Die potentiell relevanten Arten von Messunsicherheiten bei der Durchführung von Freigabemessungen mit Kontaminationsmonitoren sind in Abschnitt 4.2.2 von DIN 25457-1: 2014-12 [DIN 18] wie folgt aufgelistet:

- „Unterschiede zwischen dem tatsächlich vorliegenden und dem für die Kalibrierung verwendeten Nuklidgemisch (siehe dazu auch DIN 25457-4, DIN 25457-6 und DIN 25457-7); $u(\epsilon_{D,NV})$;
- Oberflächenbeschaffenheit des Messgutes, insbesondere die Selbstabsorption; $u(\epsilon_M)$;
- Geometrie des Messgutes, insbesondere alle Abweichungen zwischen Kalibrier- und Messgeometrie; $u(f_G)$;
- Schwankungsbreite des Nulleffekts (z. B. Einstrahlungen aus der Umgebung) sowie bei Messungen an mineralischen Strukturen Schwankungen des Gehalts an natürlichen Radionukliden (siehe DIN 25457-6 und DIN 25457-7); $u(\lambda)$.“

Im vorliegenden Fall sind die Messunsicherheiten dieser Auflistung wie folgt einzuordnen:

- Unterschiede zwischen dem tatsächlich vorliegenden und dem für die Kalibrierung verwendeten Nuklidgemisch bestehen nicht, da die für die Kontamination verwendete Lösung nur das betreffende Radionuklid (hier: I-125) enthält.
- Die Oberflächenbeschaffenheit des Messguts ist bei den hier untersuchten Verbrauchsmaterialien so gestaltet, dass ein tiefes Eindringen entweder nicht stattfindet (Handschuhe) oder dass die Kontamination zwar eindringt, das Material aber eine sehr offene porige Struktur aufweist (Zellulose) und daher nur eine geringe durch das Material selbst verursachte Selbstabsorption auftritt.
- Abweichungen zwischen Kalibrier- und Messgeometrie treten im vorliegenden Fall insbesondere durch Variation des Abstands zwischen Detektor und Messgut auf, da dieser Abstand durch Falten und Wellen im Messgut variiert, sowie durch die Abschirmwirkung des Materials der Handschuhe, wenn diese mit nach außen gekehrter Innenseite gemessen werden.
- Die Schwankungsbreite des Nulleffekts ist im vorliegenden Fall kein relevanter Parameter, da die Messungen des Nulleffekts direkt vor der Messung des Messguts erfolgten.

Dieser Anhang stellt die Messunsicherheiten beim im Hauptteil dieses Berichtes beschriebenen Messverfahren im Zusammenhang dar. Die Darstellung basiert hierbei auf Anhang A (Abschnitt 8), wo alle relevanten Grundlagen dargestellt wurden.

Abbildung 23 illustriert hierzu diejenigen Punkte im Messverfahren einschl. Probenpräparation, die einen Einfluss auf die Messunsicherheit insgesamt haben. Diese lassen sich wie folgt zusammenfassen, wobei jeweils auf die Abschnitte verwiesen wird, in denen eine detaillierte Behandlung der Messunsicherheit erfolgt:

- Bestimmung der Gesamtaktivität A_{ges} in der das Radionuklid enthaltenden Ausgangslösung: ΔA_{ges} , vgl. Abschnitt 9.1.4;
- Entnahme eines Teilvolumens V der Ausgangslösung mit einer Pipette zwecks Applikation auf das Messgut: ΔV , vgl. Abschnitt 9.1.5;
- Applikation der durch die folgende Messung nachzuweisenden Kontamination mit der Aktivität A_{mess} auf das Messgut: ΔA_{mess} , vgl. Abschnitt 9.1.6;
- Ausbreitung des Messguts in der Messgeometrie (Abschnitt 9.1.2) und Durchführung der Messung mit dem Kontaminationsmonitor mit den folgenden Haupteinflussfaktoren:

- variierender Abstand d zwischen Messobjekt und Kontaminationsmonitor durch Faltenwurf usw.: Δd , vgl. Abschnitt 9.1.9;
- ggf. Abschirmung durch eine Materiallage des Handschuhs: vgl. Abschnitt 9.1.10;
- Position des Messguts unter dem Kontaminationsmonitor: vgl. Abschnitt 9.1.11;
- vom Hersteller angegebene Effizienz η : $\Delta\eta$, vgl. Abschnitt 9.1.12.

Aus diesen Anteilen wird die Gesamtunsicherheit der Messung in Abschnitt 9.1.13 berechnet und quantitativ für I-125 und Lu-177 angegeben.

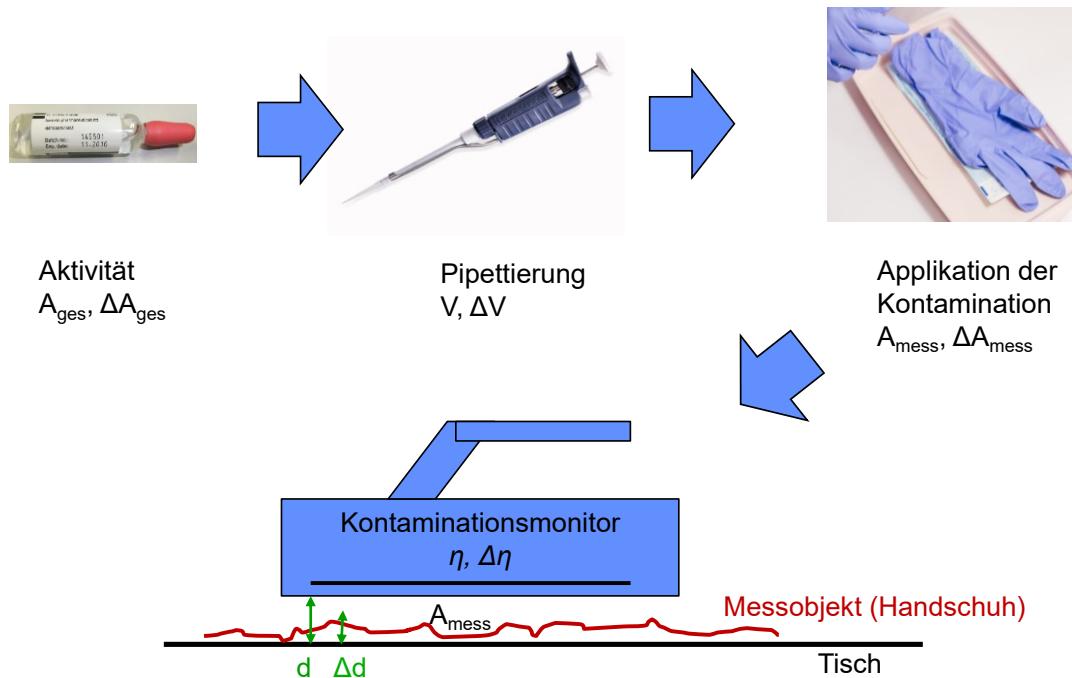


Abbildung 23: Schematische Darstellung der Einflussfaktoren auf die Messunsicherheit

9.1.2 Messgeometrie

Die folgende Übersicht stellt die Grundlagen für die Berechnung der Messunsicherheit bei Messungen mit einem Kontaminationsmonitor dar:

1. Das Messgut (z. B. ein Handschuh) liegt ausgebreitet auf einer ebenen Unterlage, wobei es wellig mit einer Höhe zwischen h_1 und h_2 über der Unterlage ist.
2. Auf dem Messgut ist Aktivität eines Einzelnuclids flächig aufgebracht, die zusammen mit ihrer Unsicherheit bekannt ist.
3. Die Fläche, auf der die Aktivität aufgebracht ist, beträgt ca. 100 cm^2 und ist kleiner als die Messfläche des Messgeräts. Bei der Messung kann die relative Positionierung zwischen kontaminierter Fläche und Messfläche des Messgeräts variieren, es ist aber immer davon auszugehen, dass die gesamte kontaminierte Fläche innerhalb der Messfläche des Messgeräts liegt.
4. Der Kontaminationsmonitor ist in einem festen, genau bekannten Abstand d zur Unterlage positioniert. Aufgrund der welligen Lage des Messguts variiert der Abstand zwischen einzelnen Teilflächen n des Messguts und der Detektorfläche zwischen $d - h_1$ und $d - h_2$.

Es werden die folgenden beiden Szenarien hinsichtlich der Orientierung der aktivitätstragenden Schicht unterschieden:

- 1. Szenario: Die Aktivität befindet sich auf der Seite des Messguts, die dem Detektor zugewandt ist. Zwischen der aktivitätstragenden Seite des Messguts und dem Detektor befindet sich somit nur Luft. Im Beispiel: Die kontaminierte Seite des Handschuhs, die bei der Arbeit nach außen getragen wurde, liegt dem Detektor direkt gegenüber.
- 2. Szenario: Die Aktivität befindet sich auf der Seite des Messguts, die dem Detektor abgewandt ist. Zwischen der aktivitätstragenden Seite des Messguts und dem Detektor befindet sich somit das Messgutmaterial und Luft. Bei den hier durchgeführten, im Hauptteil dargestellten Messungen wurden Handschuhe und Papiertüchern umgedreht. Bei Handschuhen erfolgte die Messung daher durch zwei Lagen des Handschuhmaterials (ca. 200 µm, s.u.). In diesem Fall ist die Abschirmwirkung durch das Messgut und die Unsicherheit der Dicke zweier Lagen des Messguts relevant.

In realen Fällen, bei denen der Handschuh beim Ausziehen von innen nach außen gekehrt ist, ist jedoch eher der nachfolgend dargestellte Fall relevant:

- 3. Szenario: Die kontaminierte Seite des Handschuhs, die bei der Arbeit nach außen getragen wurde, ist nach innen gekehrt, dem Detektor direkt gegenüber liegt die Seite des Handschuhs, die auf der Haut getragen wurde. In diesem Fall ist die Abschirmwirkung durch das Messgut und die Unsicherheit der Dicke einer Lage des Messguts relevant. Diese Konfiguration ist für betastrahlende Radionuklide von Belang.

9.1.3 Unsicherheiten der Aktivitätsbelegung des Messguts

Die Unsicherheit bzgl. der Aktivitätsmenge, die auf dem Messgut insgesamt appliziert wurde, setzt sich aus der Unsicherheit bzgl. der volumen- bzw. massenbezogenen Aktivität der Ausgangslösung und der Unsicherheit bei der Applikation der Aktivität durch die Pipettierung zusammen.

9.1.4 Unsicherheit der Aktivitätsbestimmung der Ausgangslösung

Die Aktivität der Lösung, in der die Radionuklide I-125 bzw. Lu-177 vorliegen, ist jeweils aufgrund der Herstellung und nachfolgenden Verdünnung mit folgenden Unsicherheiten behaftet. Durch die jeweilige Zerfallskorrektur entsteht keine Erhöhung der relativen Unsicherheit.

- I-125: Aktivitätsbestimmung Referenz-Ausgangsaktivität in Zertifikat der PTB mit $(24,0 \pm 0,6)$ kBq/g. Die relative Unsicherheit liegt somit bei 2,5 %.
- Lu-177: Aktivitätsbestimmung Lu-177 laut Hersteller $7,40 \cdot 10^9$ Bq bei Verabreichung, korrigiert durch weitere Verdünnung und radioaktivem Zerfall zum Termin der Übergabe an BS auf $8,28 \cdot 10^4$ Bq. Verifikation durch eigene Eingangsmessung $(8,214 \cdot 10^4 \pm 8,304 \cdot 10^3)$ Bq für Lu-177 und $(3,731 \cdot 10^1 \pm 3,759)$ Bq für Lu-177m. Die relative Unsicherheit liegt somit bei 10 %.

9.1.5 Unsicherheit bei der Applikation der Aktivität mittels Pipettierung

Die Unsicherheit bei der Applikation der Aktivität auf das Messgut mittels Pipettierung entsteht durch die Unsicherheit der Aufnahme des Volumens in der Pipette sowie bei der Abgabe auf das Messgut. Die betreffenden Werte beruhen auf Herstellerangaben bei sachgemäßer Handhabung. Die für die genutzten Luftpolsterpipetten „Research plus“ der Fa. Eppendorf relevanten Fehlergrenzen sind in Tabelle 13 angegeben.

Tabelle 13: Fehlergrenzen für die in den Experimenten genutzten Luftpolsterpipetten „Research plus“ der Fa. Eppendorf nach DIN EN ISO 8655

Nennvolumen	Fehlergrenzen DIN EN ISO 8655			
	systematisch		zufällig	
	± %	± µL	± %	± µL
1 µL	5,0	0,05	5,0	0,05
2 µL	4,0	0,08	2,0	0,04
5 µL	2,5	0,125	1,5	0,075
10 µL	1,2	0,12	0,8	0,08
20 µL	1,0	0,2	0,5	0,1
50 µL	1,0	0,5	0,4	0,2
100 µL	0,8	0,8	0,3	0,3
200 µL	0,8	1,6	0,3	0,6
500 µL	0,8	4,0	0,3	1,5
1000 µL	0,8	8,0	0,3	3,0
2000 µL	0,8	16	0,3	6,0
5000 µL	0,8	40	0,3	15,0
10000 µL	0,6	60	0,3	30,0

Hieraus ergeben sich die folgenden Unsicherheiten:

- I-125: Aktivitätsauftrag auf Materialien: Unsicherheit der Volumenbestimmung bei Pipettierung von 100 µl bei 1,1 % lt. Herstellerangaben.
- Lu-177: Aktivitätsauftrag auf Materialien: Unsicherheit der Volumenbestimmung bei Pipettierung von 6,5 µl (Handschuhe) bei 2,6 % lt. Herstellerangaben (interpoliert) sowie bei 7,0 % bei Pipettierung von 1,5 µl (Papiertücher) lt. Herstellerangaben (interpoliert).

Bei einer mehrfachen Pipettierung (z. B. fünfmalig 100 µl zur Erreichung von 0,5 ml) bleibt der relative Fehler konstant.

Das Eintrocknen der aktivitätshaltigen Lösung vor Durchführung der Messung führt nicht zu einer weiteren Veränderung der Aktivität, da sowohl das NaI als auch das Lu in der jeweiligen Lösung auskristallisiert (die Kristallisationsenthalpie für NaI in Wasser bei Raumtemperatur ist negativ und somit der Übergang in das Kristallgitter energetisch günstiger ist als die Sublimation oder Verdampfung; entsprechend ist der Übergang von Lu aus der Lösung in die Metallstruktur energetisch günstiger).

9.1.6 Gesamtunsicherheit der Aktivitätsbelegung des Messguts

Für die Zuordnung der Gesamtunsicherheit der Aktivitätsbelegung des Messguts werden die beiden vorgenannten relativen Unsicherheiten addiert, da sich die applizierte Aktivität multiplikativ aus der Gesamtaktivität in der Lösung und der Entnahme des betreffenden Anteils berechnet. Man erhält:

- I-125:
 - ca. $\sqrt{(2,5\%)^2 + (5 \cdot 1,1\%)^2} = 6\%$ bei Handschuhen
 - ca. $\sqrt{(2,5\%)^2 + (2 \cdot 1,1\%)^2} = 4\%$ bei Papiertüchern
- Lu-177:
 - ca. $\sqrt{(10\%)^2 + (2,6\%)^2} = 11\%$ bei Handschuhen
 - ca. $\sqrt{(10\%)^2 + (7\%)^2} = 13\%$ bei Papiertüchern.

9.1.7 Unsicherheiten bei der Messung

Alle quantitativen Angaben erfolgen für einen Kontaminationsmonitor vom Typ CoMo 170. Die Grundannahmen sind in Abschnitt 8.1.2 von Anhang A aufgeführt.

9.1.8 Abstand zwischen Messgut (Aktivität) und Messgerät

Der Abstand zwischen Messgut (Aktivität) und Messgerät bestimmt die Effizienz der Messung. Im vorliegenden Fall sind die in Abschnitt 9.1.2 genannten Größen $d = (10+2)$ mm, $h_1 = 2$ mm und $h_2 = 8$ mm. Das Messgut berührt den Detektor nicht. Der Abstand zwischen Messgut (Aktivität) und Messgeräteunterkante variiert somit zwischen 2 mm und 8 mm, zwischen Messgut und der Position des eigentlichen Detektors zwischen 4 mm und 10 mm.

9.1.9 Einfluss des Abstands auf die Effizienz

Aufgrund der Abstandsabhängigkeit der Effizienz hat die Unsicherheit bzw. Variation des Abstands zwischen Messgut und Messgerät einen direkten Einfluss auf die Effizienz bei der Messung. Für die beiden Radionuklide I-125 und Lu-177 ist die Abstandsabhängigkeit der (gesamten) Effizienz in Abbildung 24 bzw. Abbildung 25 in relativer Form dargestellt, wobei jeweils die Effizienz in Kontakt dem Wert 1 (100 %) entspricht. Eingezeichnet ist jeweils die Änderung der Effizienz für eine Änderung des Abstands um 6 mm zwischen den Werten 4 mm und 10 mm relativ zur Position des Detektors (vgl. Abschnitt 9.1.8).

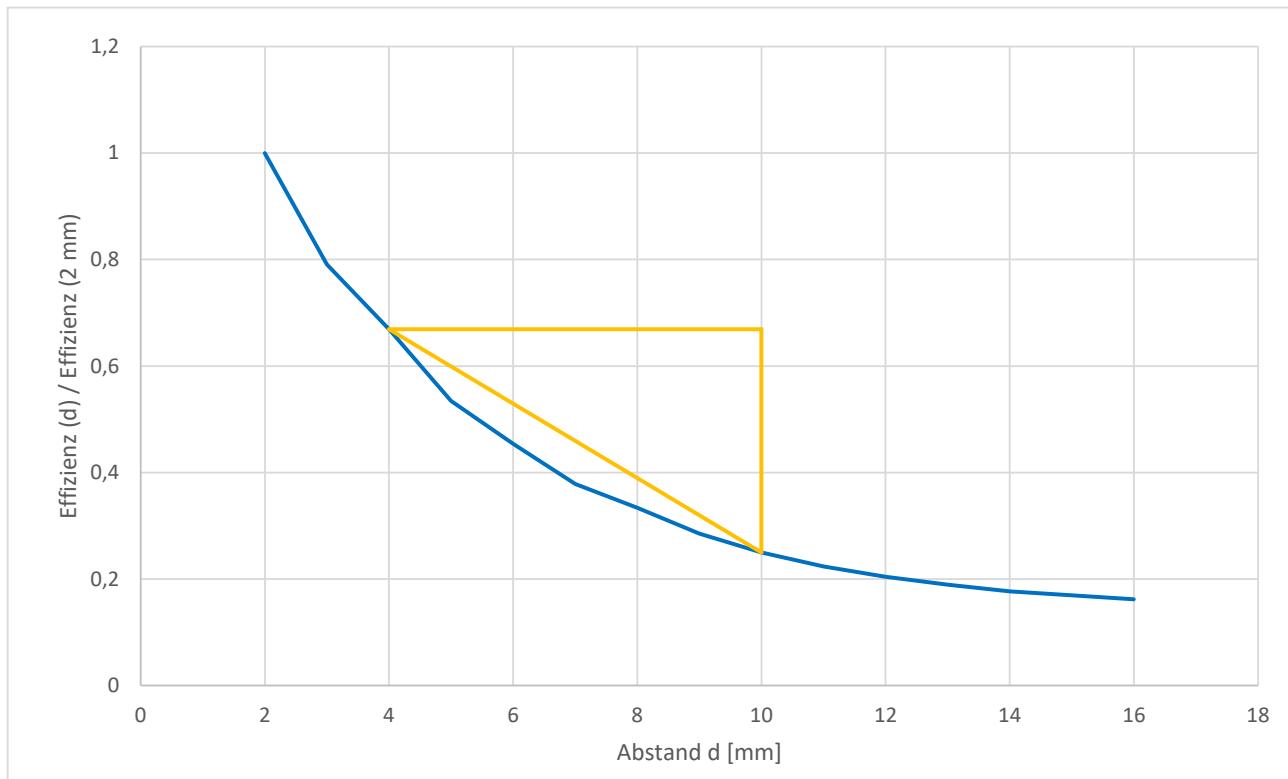


Abbildung 24: Abstandsabhängigkeit der Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Elektronen und Photonenstrahlung für I-125 (relative Werte)

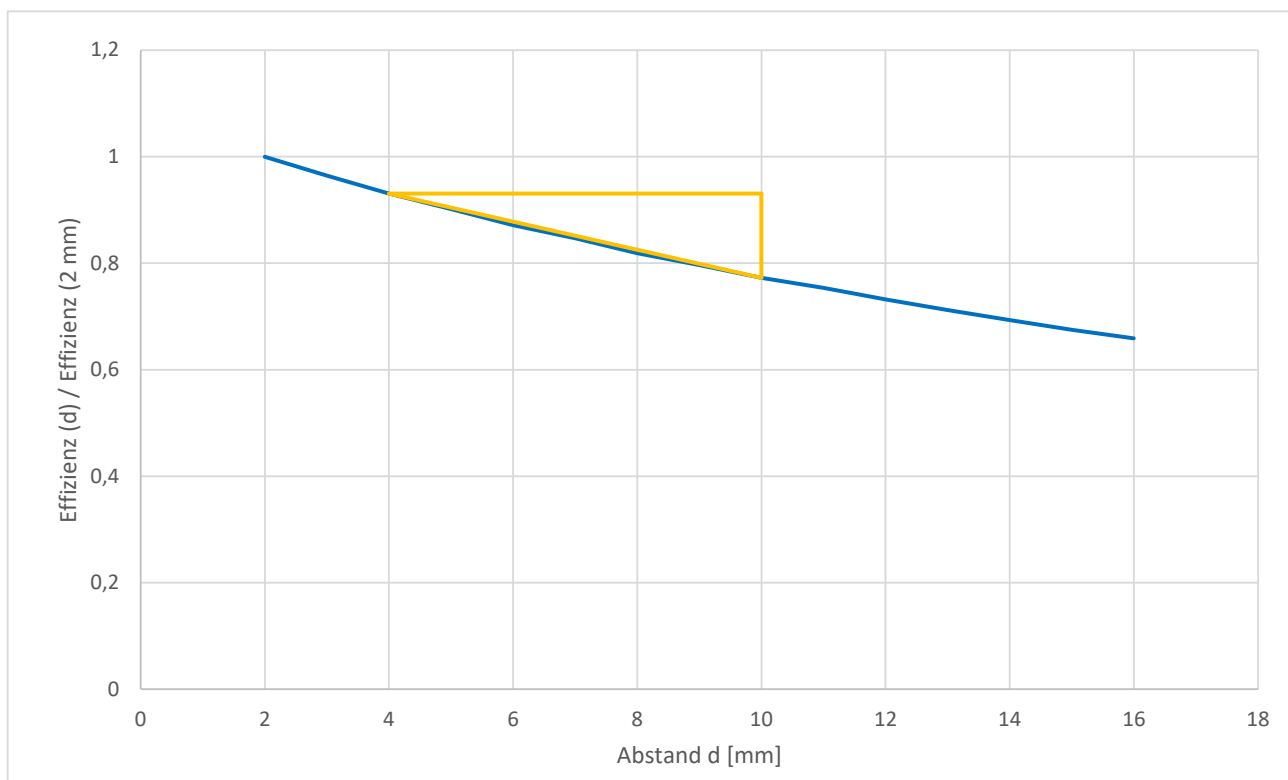


Abbildung 25: Abstandsabhängigkeit der Effizienz des Kontaminationsmonitors bei Betastrahlung, Elektronen und Photonenstrahlung für Lu-177 (relative Werte)

Für I-125 variiert die relative Effizienz für den genannten Abstandsbereich zwischen 0,67 und 0,25, für Lu-177 zwischen 0,93 und 0,77. Die relative Unsicherheit wird mit $\frac{u(\eta_{Abst})}{\eta_{Abst}}$ bezeichnet und berechnet sich hieraus zu 46 % bei I-125 und 9 % für Lu-177.

9.1.10 Einfluss der Materialdicke der Abschirmung

Die Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials ist für I-125 in Abbildung 26 dargestellt, bezogen auf einen Abstand von 7 mm zwischen Messgut und Detektor. Es zeigt sich ein extrem steiler Abfall der Effizienz des Detektors bereits in den ersten wenigen μm . Durch Material dieser Dicke werden niederenergetische Elektronen des I-125 abgefangen und die niederenergetischen Photonen so stark geschwächt, dass sie unter die Abschneideenergie fallen, so dass sie bei der Messung als Rauschen interpretiert und daher nicht zum als Messsignal gezählt werden. Dieser Effekt kann bereits durch die Mylarfolie bewirkt werden. Der anschließende weitgehend flache Verlauf der (relativen) Effizienz rührt daher, dass das Material eines Handschuhs für die verbleibenden Photonen des I-125 im Bereich 30 bis 35 keV im aufgetragenen Dickenbereich praktisch keine Abschirmung⁹ bewirkt.

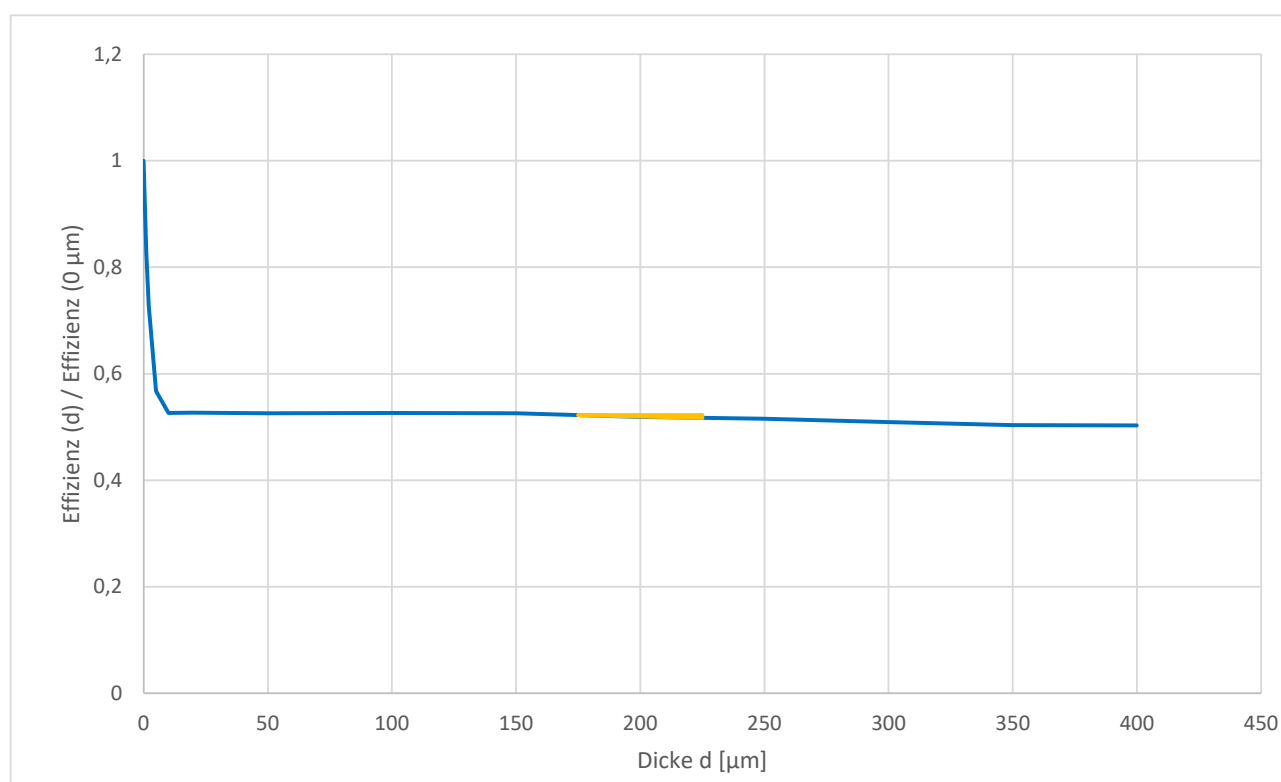


Abbildung 26: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für I-125 bei Abstand 7 mm

Die relative Unsicherheit der Effizienz bzgl. der Materialdicke wird mit $t \frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}}$ bezeichnet. Sie wird aus der Steigung der Effizienzkurve im Bereich um die zweifache Handschuhdicke ($2 \cdot 100 \mu\text{m}$) abgelesen und beträgt für I-125 aufgrund des sehr flachen Verlaufs ca. 0,5 %.

⁹⁾ Hierdurch erklärt sich, dass durch das Wenden der Handschuhe und der gefalteten Papiertücher bei den in Abschnitt 3.1.8 im Hauptteil angegebenen Messergebnissen nahezu kein Unterschied zwischen Vorder- und Rückseitenmessung festzustellen ist; vgl. Tabelle 1.

Für Betastrahlung, die im Fall des Lu-177 den größten Anteil am Messeffekt hat, bestimmt die Dicke des Materials die Abschirmung und somit die Effizienz. Abbildung 27 zeigt die Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke des Materials, normiert auf den Fall ohne Abschirmung (Dicke 0), für einen Abstand von 7 mm. Das an der Kurve eingezeichnete Dreieck zeigt die Variation der Effizienz, wenn die Dicke des Materials um die zweifache Handschuhdicke ($2 \cdot 100 \mu\text{m}$) zwischen $175 \mu\text{m}$ und $225 \mu\text{m}$ variiert. Die relative Unsicherheit bzgl. der Materialdicke $\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}}$ beträgt ca. 30 %.

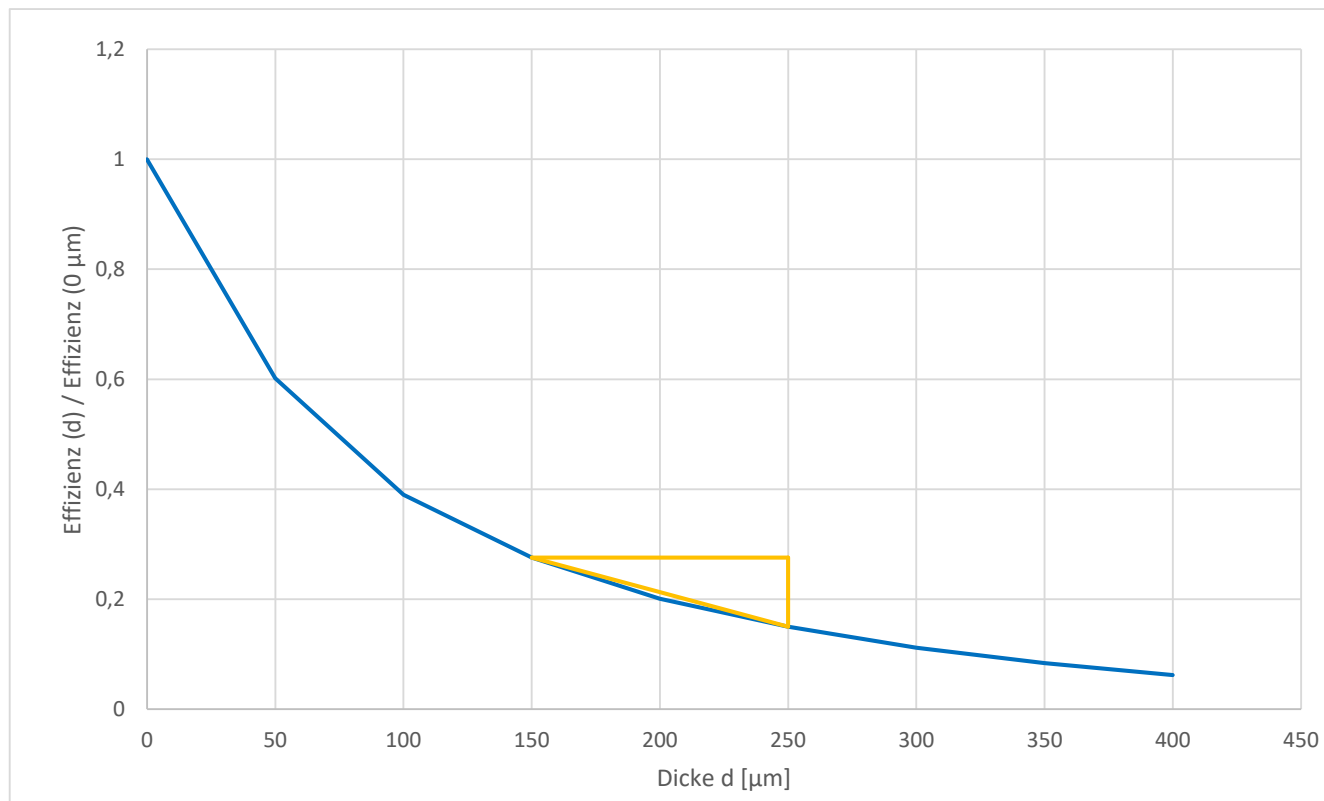


Abbildung 27: Abhängigkeit der relativen Effizienz von der Dicke des abschirmenden Materials für Lu-177

9.1.11 Einfluss der Messposition

Der Einfluss der Position der kontaminierten Fläche unter der Detektorfläche ist in Abbildung 28 (I-125) und Abbildung 29 (Lu-177) dargestellt. Dabei werden verschiedene Ausdehnungen der kontaminierten Fläche betrachtet ($10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$, $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$ und $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$). Als Lage wird angenommen, dass die kontaminierte Fläche bezüglich des Detektors zentriert ist („Mitte“), sowie zum Rand („Seite“ bzw. „Oben“) oder zur Ecke des Detektors verschoben ist (jeweils bis an den Rand des Detektors bzw. zur Hälfte zwischen Rand und Mitte). Die Ergebnisse sind auf die Mittellage und eine Ausdehnung von $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ bezogen. Geht man vom Standardfall einer leicht aus dem Zentrum verschobenen Position aus, so variiert die Effizienz um ca. 10 %.

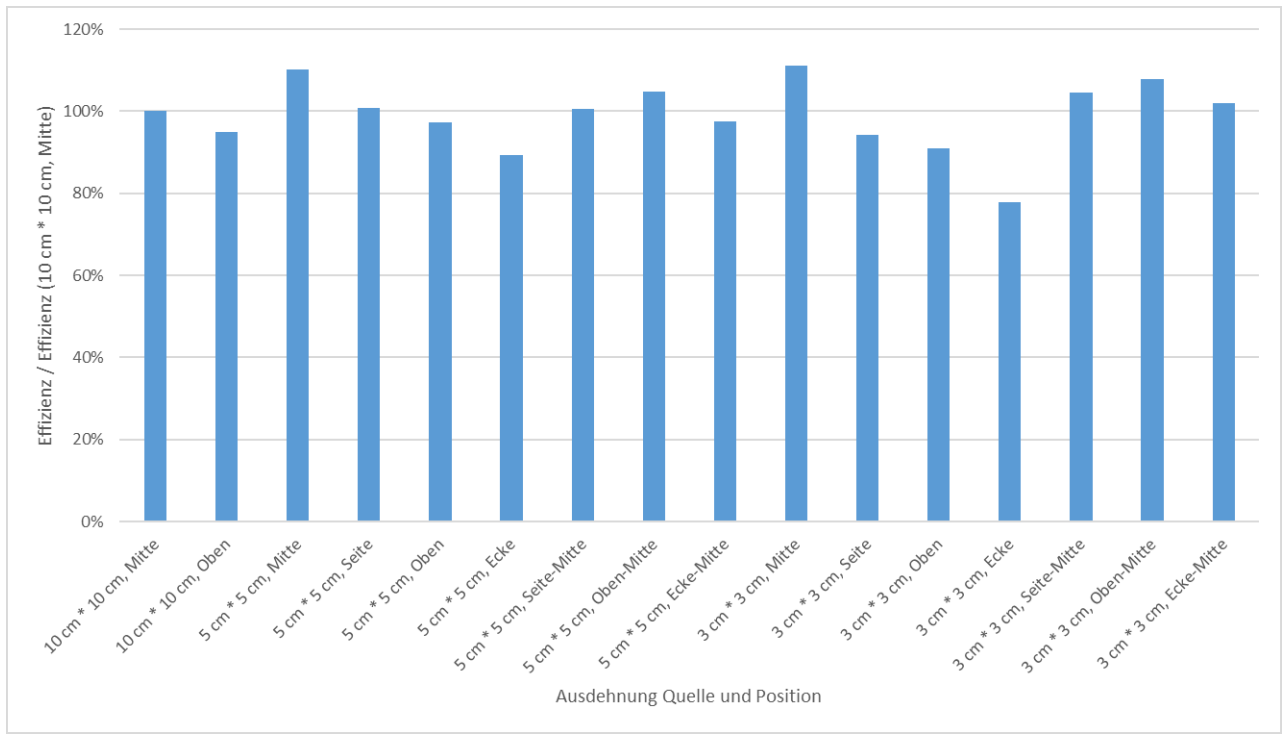


Abbildung 28: Abhängigkeit der Effizienz von der Position des Messguts unter der Detektorfläche (für I-125)

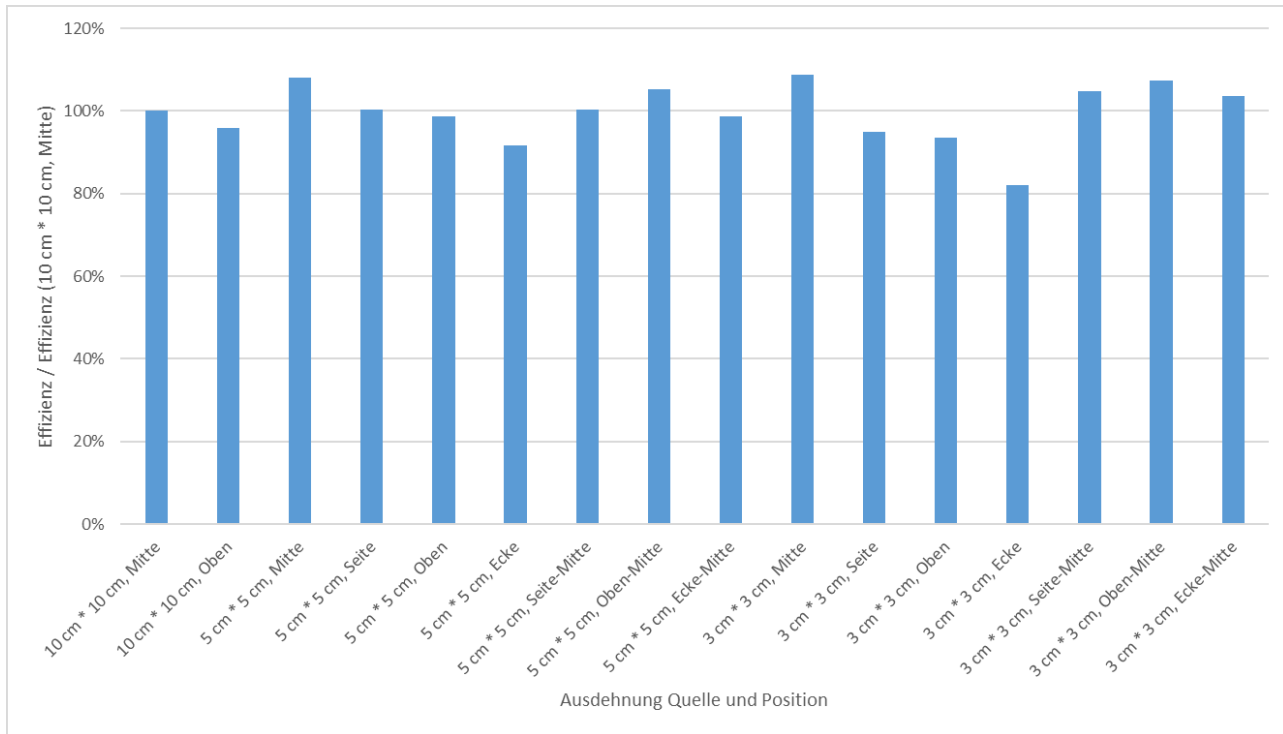


Abbildung 29: Abhängigkeit der Effizienz von der Position des Messguts unter der Detektorfläche (für Lu-177)

Die relative Unsicherheit bzgl. der Messposition wird mit $\frac{u(\eta_{Pos})}{\eta_{Pos}}$ bezeichnet und beträgt ca. 10 %.

9.1.12 Angaben der Messgerätehersteller zur Unsicherheit des Wirkungsgrades bei Kontaktmessung

9.1.12.1 CoMo 170, NUVIA Instruments GmbH

Seitens des Messgeräteherstellers des CoMo 170, NUVIA Instruments GmbH (vormals S.E.A. GmbH und MED Nuklear-Medizintechnik Dresden GmbH) liegen in den Datenblättern Angaben zum Wirkungsgrad wie folgt vor:

- I-125: 12 %
- Lu-177: 35 % (keine Angabe zu Lu-177m)

Diese Angaben werden als „Mittelwerte aus Messungen mit 100 cm²-Präparaten“ charakterisiert, enthalten jedoch keine Angaben zur Unsicherheit dieser Werte.

Auf Anfrage wurden Unterlagen zur tatsächlichen Durchführung der Bestimmung des Oberflächenansprechvermögens für beide Radionuklide übersandt.

- Für I-125 wird die Unsicherheit für den Wirkungsgrad mit „10-20 %“ angegeben.
- Für Lu-177 wird die Interpolation des Wirkungsgrads aus den Werten für Co-60 und Cs-137 detailliert beschrieben und zu 32,5 % abgeleitet. Eine Unsicherheit hierzu wird nicht quantitativ angegeben, aufgrund der verschiedenen Schritte bei der Herleitung muss jedoch von einer gleich hohen Unsicherheit ausgegangen werden.

Die relative Unsicherheit des Oberflächenansprechvermögens wird hier mit $\frac{u(\eta_{OAV})}{\eta_{OAV}}$ bezeichnet und wird für beide Radionuklide mit 15 % angesetzt.

9.1.12.2 LB 124 SCINT, Berthold Technologies Ltd.

Seitens des Messgeräteherstellers des LB 124 SCINT, Berthold Technologies Ltd., liegen in den Datenblättern Angaben zum Wirkungsgrad wie folgt vor:

- I-125: 8,2 %
- Lu-177: 33,2 % (keine Angabe zu Lu-177m)

Auf Anfrage wurden keine weiteren Angaben zu den relativen oder absoluten Unsicherheiten der Wirkungsgrade gegeben. Aus der Unterlage „Technical Note No. 328: Determination of the Characteristic Limits for the Measurement of Ionizing Radiation according to the International Standard ISO 11929“ (Berthold Technologies, 2013) ist zu entnehmen, dass bei der darin enthaltenen Unsicherheitsberechnung „the uncertainties of the calibration factors have been taken into account as 5.4 % (< 5 % for the reference sources and < 2 % statistical)“.

9.1.13 Berechnung der Gesamtunsicherheit

9.1.14 Genereller Ansatz

Die Berechnung der Aktivität erfolgt gemäß Formel (5) aus DIN 25457-1:2014-12:

$$y = (r_g - r_0 x_3 - x_4) \cdot w = \left(\frac{n_g}{t_g} - \frac{n_0}{t_0} x_3 - x_4 \right) \cdot w \quad \text{mit} \quad w = \frac{x_6 x_8 x_{10} \dots}{x_5 x_7 x_9 \dots} \quad (1)$$

wobei y die Messgröße, $r_g = n_g/t_g$ und $r_0 = n_0/t_0$ die Messzeiten der Zählraten der Brutto- und der Nulleffektmessungen, x_3 ein Abschirmfaktor, x_4 eine zusätzliche Untergrundkorrektur und x_i (mit $i \geq 5$) weitere

Korrekturfaktoren sind, die zur Größe w (Gesamt-Kalibrierfaktor) zusammengefasst werden. Je nach Umständen der Messung sind die Faktoren x_3, x_5, x_6 etc. gleich 1 bzw. x_4 gleich 0 zu setzen.

Die Standardmessunsicherheit der Messgröße y berechnet sich gemäß Formel (7) aus DIN 25457-1:2014-12:

$$u(y) = \sqrt{w^2 \cdot \left(\frac{r_g}{t_g} + \frac{x_3^2 r_0}{t_0} + r_0^2 u^2(x_3) + u^2(x_4) \right) + y^2 u_{rel}^2(w)} \quad \text{mit} \quad u_{rel}^2(w) = \sum_{i=5}^m \frac{u^2(x_i)}{x_i^2} \quad (2)$$

Im vorliegenden Fall ohne Abschirmfaktor des Nulleffekts und ohne Untergrundkorrektur ergeben sich aus (1) und (2) die Beziehungen gemäß (3), (4) und (5):

$$y = w \cdot (r_g - r_0) = w \cdot \left(\frac{n_g}{t_g} - \frac{n_0}{t_0} \right) \quad (3)$$

und

$$u(y) = \sqrt{w^2 \cdot \left(\frac{r_g}{t_g} + \frac{r_0}{t_0} \right) + y^2 u_{rel}^2(w)} \quad (4)$$

in Verbindung mit

$$u_{rel}^2(w) = \left(\frac{u(\eta_{Abst})}{\eta_{Abst}} \right)^2 + \left(\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}} \right)^2 + \left(\frac{u(\eta_{Pos})}{\eta_{Pos}} \right)^2 + \left(\frac{u(\eta_{OAV})}{\eta_{OAV}} \right)^2 \quad (5)$$

9.1.15 I-125 mit Abschirmung durch Handschuhmaterial

Die Anwendung der Beziehungen (3), (4) und (5) ergibt für I-125 bei Anwendung des CoMo 170 das in (6) angegebene Ergebnis für die relative Unsicherheit der Effizienz unter Anwendung der in Abschnitt 9.1.7 aufgelisteten einzelnen Unsicherheiten für das 3. Szenario aus Abschnitt 9.1.2 (Handschuhinnenseite ist nach außen gekehrt, eine Lage Material schirmt ab):

- $\frac{u(\eta_{Abst})}{\eta_{Abst}} = 46 \%$
- $\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}} = 0,5 \%$
- $\frac{u(\eta_{Pos})}{\eta_{Pos}} = 10 \%$
- $\frac{u(\eta_{OAV})}{\eta_{OAV}} = 15 \%$

$u_{rel}^2(w) = 0,24$ bzw. $u_{rel}(w) = 49 \%$	(6)
---	-----

Mit diesem Ergebnis können nun die Werte in Gl. (4) eingesetzt werden. Hierbei werden folgende Zählraten und Messzeiten für die Messung an den Handschuhen berücksichtigt:

- Messzeit Nulleffekt t_0 : 120 s
- Zählrate Nulleffekt r_0 : 10,9 Ips
- Messzeit Bruttoeffekt t_g : 20 s
- Zählrate Bruttoeffekt r_g : 36,1 Ips
- auf Abstand korrigierte Effizienz ohne Abschirmung w : 1/0,064

$$A = ((36,1-10,9) / 0,064) \text{ Bq} = 394 \text{ Bq}$$

Die Unsicherheit der Aktivität $u(A)$ berechnet sich hieraus als:

$$u(A) = \sqrt{\left(\frac{1}{0,064}\right)^2 \cdot \left(\frac{36,1}{20} + \frac{10,9}{120}\right) + 394^2 \cdot 0,244} \text{ Bq} = 196 \text{ Bq}$$

Somit lautet das Ergebnis für die Aktivitätsbestimmung $(394 \pm 196) \text{ Bq}$. Die relative Unsicherheit der Aktivitätsbestimmung liegt somit bei 49 %.

Im Hauptteil dieses Berichts werden Berechnungen in gleicher Weise für jedes Messergebnis durchgeführt.

9.1.16 I-125 ohne Abschirmung durch Handschuhmaterial

Wird dieselbe Rechnung wie in Abschnitt 9.1.15 für das 1. Szenario aus Abschnitt 9.1.2 (Handschuhaußenseite ist nach außen gekehrt, keine Abschirmung) durchgeführt, so wird der Wert $\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}} = 0$. Wegen des extrem geringen Einflusses der Abschirmung auf die Effizienz ändert sich der Wert der relativen Unsicherheit hierdurch nicht. Die Ergebnisse aus Abschnitt 9.1.15 gelten auch in diesem Fall.

Im Hauptteil dieses Berichts werden Berechnungen in gleicher Weise für jedes Messergebnis durchgeführt.

9.1.17 Lu-177 mit Abschirmung durch Handschuhmaterial

Die Anwendung der Beziehungen (3), (4) und (5) ergibt für Lu-177 bei Anwendung des CoMo 170 das in (7) angegebene Ergebnis für die relative Unsicherheit der Effizienz unter Anwendung der in Abschnitt 9.1.7 aufgelisteten einzelnen Unsicherheiten:

- $\frac{u(\eta_{Abst})}{\eta_{Abst}} = 9 \%$
- $\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}} = 30 \%$
- $\frac{u(\eta_{Pos})}{\eta_{Pos}} = 10 \%$
- $\frac{u(\eta_{OAV})}{\eta_{OAV}} = 15 \%$

$$u_{rel}^2(w) = 0,13 \text{ bzw. } u_{rel}(w) = 36 \% \quad (7)$$

Mit diesem Ergebnis können nun die Werte in Gl. (4) eingesetzt werden. Hierbei werden folgende Zählraten und Messzeiten für die Messung an den Handschuhen (rückseitig) berücksichtigt:

- Messzeit Nulleffekt t_0 : 120 s
- Zählrate Nulleffekt r_0 : 9,8 lps
- Messzeit Bruttoeffekt t_g : 20 s
- Zählrate Bruttoeffekt r_g : 46,5 lps
- Effizienz w : 1/0,074

$$A = ((46,5 - 9,8) / 0,074) \text{ Bq} = 496 \text{ Bq}$$

Die Unsicherheit der Aktivität $u(A)$ berechnet sich hieraus als:

$$u(A) = \sqrt{\left(\frac{1}{0,074}\right)^2 \cdot \left(\frac{46,5}{20} + \frac{9,8}{120}\right) + 496^2 \cdot 0,13} \text{ Bq} = 180 \text{ Bq}$$

Somit lautet das Ergebnis für die Aktivitätsbestimmung $(496 \pm 180) \text{ Bq}$. Die relative Unsicherheit der Aktivitätsbestimmung liegt somit bei 36 %.

Im Hauptteil dieses Berichts werden Berechnungen in gleicher Weise für jedes Messergebnis durchgeführt.

9.1.18 Lu-177 ohne Abschirmung durch Handschuhmaterial

Wird dieselbe Rechnung wie in Abschnitt 9.1.17 für das 1. Szenario aus Abschnitt 9.1.2 (Handschuhaußenseite ist nach außen gekehrt, keine Abschirmung) durchgeführt, so wird der Wert $\frac{u(\eta_{Mat})}{\eta_{Mat}} = 0$. Wird dieselbe Rechnung ausgeführt, wobei als Effizienz der Wert ohne Abschirmung (29 %) eingesetzt wird, ergibt sich als Ergebnis für die Aktivitätsbestimmung $(577 \pm 117) \text{ Bq}$. Die relative Unsicherheit der Aktivitätsbestimmung liegt somit bei 20 %. Diese liegt wegen der Tatsache, dass hier die hohe relative Unsicherheit aufgrund der Abschirmung durch das Material des Handschuhs nicht in die Berechnung eingeht, erheblich unterhalb des Werts mit Abschirmung durch das Handschuhmaterial.

Im Hauptteil dieses Berichts werden Berechnungen in gleicher Weise für jedes Messergebnis durchgeführt.

10 Anhang C: Modellierung der Selbstabsorption einer Schicht aus NaI

10.1.1 Hintergrund

Das Radionuklid I-125 zerfällt zu 100 % durch Elektroneneinfang mit Aussendung eines Gammaquants von ca. 35,5 keV bei einer Häufigkeit von 6,68 % und unter Aussendung von niederenergetischer Röntgenstrahlung. Gleichzeitig weist das Element Iod bei der Energie 33,1694 keV einen erheblichen Sprung des Massenschwächungskoeffizienten nach oben auf, wodurch die nachzuweisende Gammastrahlung bei einer hinreichend dicken Kontaminationsschicht, in welcher das Iod eingebettet ist, abgeschirmt werden könnte. Um auszuschließen, dass dieser Effekt bei den hier durchgeführten Experimenten mit I-125 eine Rolle spielt, wird das Abschirmverhalten in diesem Anhang näher untersucht.

10.1.2 Mögliche Selbstabsorption in einer NaI-Schicht

Das hier verwendete I-125 wurde von der PTB in einer wässrigen Lösung in der chemischen Zusammensetzung als Natriumiodid (NaI) übergeben, sodass nach erfolgter Kontamination der Verbrauchsmaterialien und der Verdunstung des Wasseranteils die Kontamination als anhaftende NaI-Schicht auf dem Handschuh bzw. im Zellulosegitter des Papierhandtuchs verbleibt. Die Messungen der Vorder- und Rückseite der Handschuhe und Papierhandtücher (Abschnitt 3.1.8 im Hauptteil) unterscheiden sich nur um wenige Impulse pro Sekunde, woraus deutlich wird, dass die Nitril-Schicht bzw. drei bis vier Lagen Papiertuch keine wesentliche Absorption für die Gammastrahlung verursachen.

Um zu quantifizieren, ob eine NaI-Schicht einen solchen Einfluss haben könnte, wird zunächst der Massenschwächungskoeffizient für Iod betrachtet. Die folgende Abbildung 30 stammt aus der Datenbank des National Institute of Standards and Technology (NIST), wobei die Beschriftung im Diagramm übersetzt wurde. Auf der Ordinate ist der Massenschwächungskoeffizient für Photonen als Quotient aus Schwächungskoeffizienten μ [1/cm] und Dichte ρ [g/cm³] aufgetragen.

Dabei ist zu sehen, dass das Iod bei 33,1694 keV einen Sprung im Massenschwächungskoeffizienten aufweist, der somit auch die Abschirmung der in unmittelbarer Nähe liegende Gammalinie von 35,5 keV des I-125 beeinflusst¹⁰. Die quantitative Analyse der Dickenabhängigkeit dieser Abschirmung erfolgt im folgenden Abschnitt 10.1.3.

¹⁰ Im Rahmen dieses Vorhabens wurde nur die Messung des Isotops I-125 messtechnisch untersucht. Das Iod-Isotop I-126, das als Verunreinigungsnuklid bei I-125 vorliegt, zerfällt durch Elektroneneinfang und in sehr geringem Anteil durch β^+ - sowie durch β^- -Zerfall und ist daher in Summe bedeutend besser messbar. Im medizinischen Alltag ist die Messbarkeit für die Freigabe aufgrund der kurzen HWZ von 12,9 Tagen nicht von Bedeutung, da für I-126 eine Abklinglagerung möglich ist. Weiterhin liegt I-125 als Verunreinigungsnuklid bei I-123 vor. Da hier aber auch Te-121m mit einer HWZ von 154 Tagen und einem massenspezifischen Freigabewert nach Anl. 4, Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV von nur 1 Bq/g als Verunreinigungsnuklid vorliegt, wäre die Messung von I-125 nur für die Bestimmung der Ausschöpfung der Summenformel notwendig. Die anderen Verunreinigungsnuklide des I-123 sind aber nicht mehr mit Kontaminationsmonitor, sondern nur noch mit Gammaskpektrometer messbar, sodass ein Freigabemessverfahren für Abfälle aus I-123-Behandlungen nur noch gammaskpektrometrisch durchgeführt werden kann. Folglich ist eine Freigabemessung mit Kontaminationsmonitor nur dann notwendig, wenn I-125 als Wirknuklid eingesetzt wird.

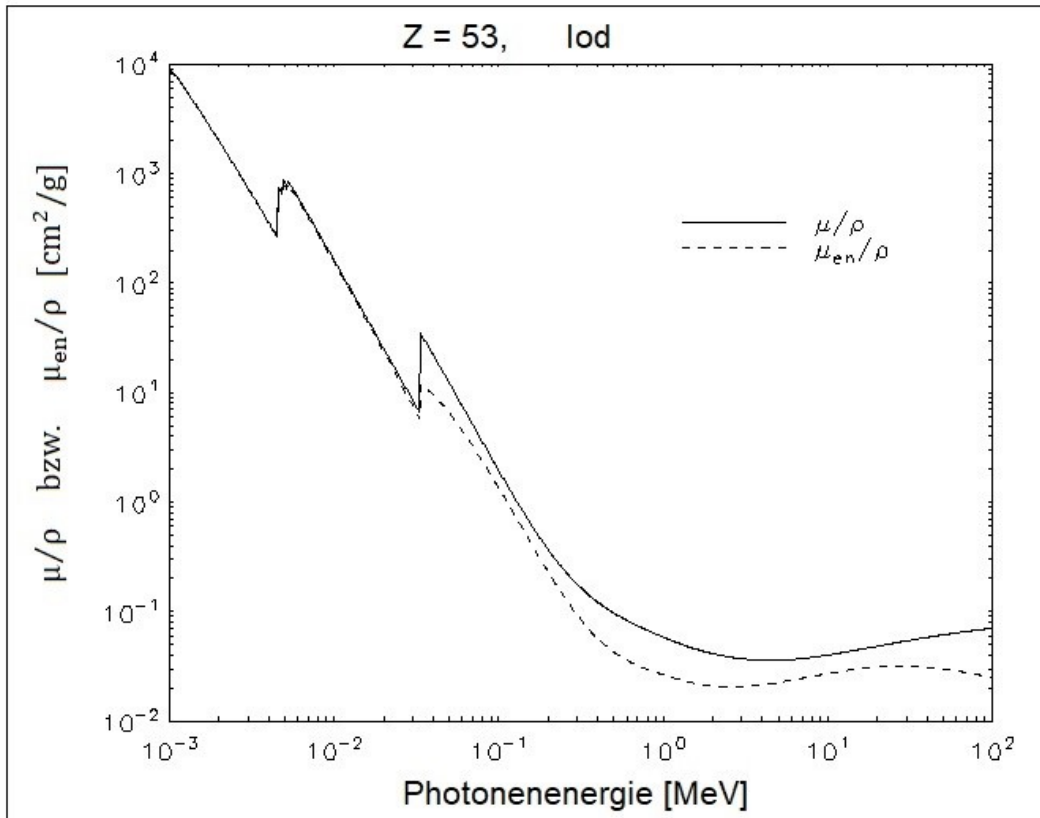


Abbildung 30: Massenschwächungskoeffizient des Iods [NIS 21]

10.1.3 Einfluss der Kontaminationsschichtdicke bei I-125

10.1.4 Einfluss der die Kontamination tragenden Schichtdicke

Das I-125 wurde von der PTB chemisch als NaI übergeben, das nach dem Trocknungsprozess in kristalliner Form mit einer Dichte von 3,67 g/cm³ auf den Handschuhen bzw. in der Gitterstruktur der Papiertücher vorliegt. Auf Basis des Massenschwächungskoeffizienten kann die Schichtdicke, für die nur noch die Hälfte der vorhandenen Aktivität gemessen werden kann, zunächst in einer überschlägigen Handrechnung abgeschätzt werden. Dabei wird von einer homogenen Aktivitätsverteilung in der Schicht ausgegangen. Die gesamte Aktivität A_{ges} in einer Schichtdicke d wird durch das Integral in Gleichung (1), wobei $a(z)$ die schichtdickenspezifische Aktivität in Bq/cm ist.

$$A_{ges} = \int_0^d a(z) dz \quad (1)$$

Nachdem die Aktivität homogen verteilt ist, ist $a(z)$ konstant, sodass $a(z) = \frac{A_{ges}}{d}$ ist. Für eine Messung muss die Schwächung in Abhängigkeit der Schichtdicke berücksichtigt werden, woraus für die gemessene Aktivität A_{mess} gilt:

$$A_{mess} = \int_0^d a(z) \cdot e^{-\mu(d-z)} dz = A_{ges} \cdot \frac{1 - e^{-\mu \cdot d}}{\mu \cdot d} \quad (2)$$

Zu Bestimmung der Schichtdicke, die zu einer Abschwächung um den Faktor 2 führt, wird Gleichung (2) für $\frac{A_{mess}}{A_{ges}} = 0,5$ iterativ gelöst, was zu $\mu d \approx 1,59$ führt.

In den folgenden Berechnungsschritten wird Natrium weitestgehend vernachlässigt, da zum einen dessen Massenschwächungskoeffizient im Energiebereich von 30-40 keV um zwei Zehnerpotenzen geringer als derjenige für Iod ist und zum anderen die molare Masse von Na-23 nur gut 20 % von Iod-125 aufweist. Aus den Daten von [NIS 21] folgt, dass der Massenschwächungskoeffizient μ/ρ bei einer Energie von 33,1694 keV für Iod 35,82 cm²/g beträgt. Das Gammaquant aus dem Zerfall des I-125 mit ca. 35,5 keV ist für eine Handrechnung ausreichend nahe der Sprungstelle bei 33,1694 keV, sodass keine Interpolation des Massenschwächungskoeffizienten auf 35,5 keV durchgeführt wird. Diese vereinfachende Vorgehensweise ist konservativ, da durch das Abfallen des Massenschwächungskoeffizienten nach der Sprungstelle (s. Abbildung 30) diejenige Schichtdicke, die zu einer Abschwächung um den Faktor 2 führt, unterschätzt wird. Um aus μd in Gleichung (2) die Schichtdicke d zu berechnen, wird der Massenschwächungskoeffizient in [NIS 21] mit der Dichte von NaI von 3,67 g/cm³ umgerechnet, sodass sich μ auf 131,5 cm⁻¹ beläuft. Somit ergibt sich für I-125 eine die Messung um den Faktor 2 abschirmende Schichtdicke von ca. 120 μ m (Halbwertsschichtdicke).

10.1.5 MCNP-Modell zur Berücksichtigung des Massenschwächungskoeffizienten des NaI

Zur Überprüfung der Abschwächung aus dieser genäherten Handrechnung wurde zum Vergleich ein Modell für den Monte-Carlo N-Particle Transport Code (MCNP) erstellt, das in Abbildung 31 dargestellt ist.

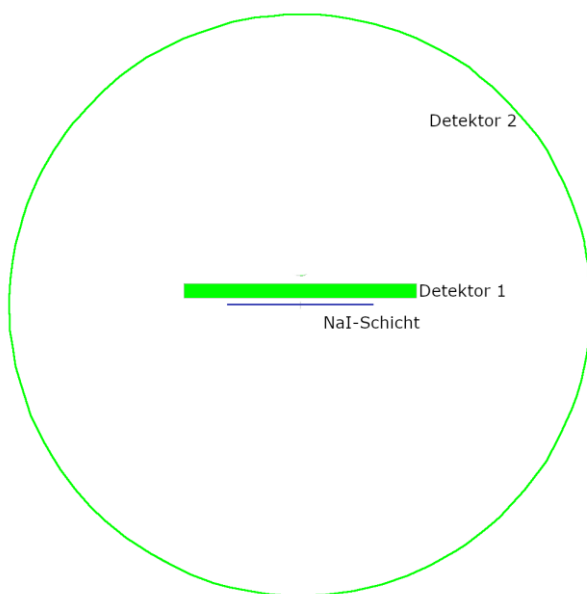


Abbildung 31: Aufbau des MCNP-Modells zur Modellierung der Abschirmung durch eine NaI-Schicht

Das MCNP-Modell besteht aus den folgenden Komponenten:

- Einer NaI-Schicht mit der Dichte 3,6 g/cm³ und den horizontalen Abmessungen 10 cm × 10 cm und einer Dicke zwischen 0,1 mm und 0,5 mm. Zur Prüfung der abschirmenden Wirkung von NaI im Vergleich zu anderem Material wurde in einer Simulation als Material Luft verwendet, allerdings mit der Dichte von 3,6 g/cm³, um Dichteeffekte ausschließen zu können.

- Einem Detektorbereich („Detektor 1“), der den Kontaminationsmonitor repräsentiert (Abmessungen $16\text{ cm} \times 16\text{ cm} \times 1\text{ cm}$) in einem Abstand von 5 mm zur Schicht. Dieser Detektor wird als Luft (Dichte $0,001205\text{ g/cm}^3$) angenommen und zur Bestimmung des mittleren Photonenflusses im Detektorvolumen verwendet, wobei der Photonenfluss normiert wird auf (Photonen/cm²)/emittierte Photonen (Anmerkung: Hiermit wird nicht die Wechselwirkung in einem realen Detektor beispielsweise mit dem Szintillationsmedium modelliert, sondern lediglich der Photonenfluss am Ort des Detektors festgestellt.)
- Einer Kugelfläche („Detektor 2“) mit einem Radius von 20 cm um den gesamten Aufbau. Hier wird der Photonenfluss durch die gesamte Detektorfläche bestimmt, wobei die Normierung so gewählt ist, dass sich 1 ergibt, wenn alle emittierten Photonen die Fläche durchdringen. Also ist das Ergebnis die Anzahl der Photonen durch Detektor 2 bezogen auf die Anzahl der emittierten Photonen. Detektor 2 dient nur der Qualitätssicherung der Simulation und hat keine Funktion in der Realität.

Zur Prüfung des Abschwächungsfaktors in Abhängigkeit von der Dicke der NaI-Schicht wurden zwei Ausgangsszenarien simuliert.

1. Im ersten Fall wird der Quellbereich direkt an der Unterseite der NaI-Schicht gewählt. Die Ausdehnung der Quelle beträgt in diesem Fall konstant $10\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 0,1\text{ mm}$. Die Quellschicht selbst besteht aus Luft, sodass es nicht zu einer Abschirmung des I-125 in der Quelle kommt. Dieses Szenario kann in der Realität nicht auftreten, da bei einer eingetrockneten Kontamination von einer homogenen I-125-Schicht auszugehen ist, sodass eine Abschirmung innerhalb der Schicht stattfindet. Nichtsdestotrotz zeigt die Simulation dieses Falles die Größenordnung, in der eine Abschirmung durch NaI zu erwarten ist.
2. Im zweiten Fall wird zur Prüfung der realen Abschirmwirkung die I-125-Quelle homogen in der NaI-Schicht verteilt ($10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ mit der jeweiligen Schichtdicke).

Die gesamte Umgebung des Aufbaus besteht aus Luft der Dichte von $0,001205\text{ g/cm}^3$. In sämtlichen Simulationen erfolgt die Emission der Photonen isotrop in alle Raumrichtungen.

Für Referenzmesswerte wurde der Fall 1 zunächst ohne eine Abschirmung zwischen Quelle und Detektor 1 simuliert, sodass dies den Idealfall mit der maximalen Anzahl der vom Detektor zählbaren Photonen darstellt. Anschließend wurde zwischen die Quelle und den Detektor 1 eine $100\text{ }\mu\text{m}$ dicke NaI-Schicht aus stabilem NaI platziert und die Simulation wiederholt. In weiteren Schritten wurde die Dicke d der NaI-Schicht zwischen Quelle und Detektor 1 jeweils um $100\text{ }\mu\text{m}$ bis auf $500\text{ }\mu\text{m}$ erhöht. Die bei vorhandenen Abschirmdicken noch in Detektor 1 zählbare Anzahl der Photonen wurde ins Verhältnis mit der Photonenzahl aus der Simulation ohne Abschirmung gesetzt. Hieraus ergeben sich in Abhängigkeit der jeweiligen Dicke der Abschirmschicht dimensionslose Schwächungsfaktoren bzw. prozentuale Durchdringungsanteile als reziproke Schwächungsfaktoren (jeweils bezogen auf die Anzahl an Photonen im Detektor bei $d = 0,0\text{ mm}$).

Die Ergebnisse der Simulation zu Auswirkungen unterschiedlicher Abschirmdicken auf die gemessene Aktivität (Quelle unterhalb NaI-Schicht) ist in Tabelle 14 dargestellt.

Tabelle 14: Fall 1: Schwächungsfaktor bzw. prozentualer Durchdringungsanteil von Photonen durch NaI-Schichten

Schichtdicke d [mm]	Schwächungsfaktor		Prozentualer Durchdringungsanteil	
	Detektor 1	Detektor 2	Detektor 1	Detektor 2
0,0	1,0	1,0	100 %	100 %
0,1	3,3	1,2	30 %	81 %
0,2	6,4	1,4	16 %	74 %
0,3	10,8	1,4	9 %	70 %
0,4	16,5	1,5	6 %	68 %
0,5	23,5	1,5	4 %	67 %

Mit den Zählwerten aus Detektor 2 ergeben sich wegen der 4π -Geometrie des Detektor 2 in Tabelle 14 deutlich niedrigere Schwächungsfaktoren als mit Detektor 1. Weiterhin weist Detektor 1 mit linear ansteigenden Abschirmschichten keine exponentielle Schwächung auf. Diese ließe sich nur bei Punktquellen beobachten; sobald jedoch eine der Realität entsprechende ausgedehnte Quelle von z. B. 100 cm² und ein in der Fläche größerer Detektor verwendet wird, führen die in MCNP simulierten dreidimensionalen Streuungen der Photonen im Luftvolumen zu mit sukzessive zunehmender Schichtdicke immer langsamer steigenden Schwächungsfaktoren.

Im Fall 2 wird die Quelle aus Fall 1 durch eine NaI-Schicht ersetzt, in der die Aktivität der Quelle homogen verteilt ist. Eine Schichtdicke von 0 mm entspricht dabei dem Referenzfall, dass die Photonen aus einer fiktiven Luftschicht (bzw. aus einer NaI-Schicht mit verschwindender Dicke) emittiert werden. In den Folgesimulationen wurde die Quelle als NaI-Schicht mit homogen verteiltem I-125 angenommen und die Schichtdicke der Quelle erneut in 100 µm-Schritten von 100 auf 500 µm erhöht. Wie im Fall 1 wurden die jeweils im Detektor 1 gezählten Photonen bei unterschiedlichen NaI-Schichtdicken an mit dem Referenzfall d = 0 ins Verhältnis gesetzt und die Ergebnisse für diese Szenarien sind in Tabelle 15 dargestellt.

Tabelle 15: Fall 2: Schwächungsfaktor bzw. prozentualer Durchdringungsanteil bei Kontaminationsschichten unterschiedlicher Dicken

Schichtdicke d [mm]	Schwächungsfaktor		Prozentualer Durchdringungsanteil	
	Detektor 1	Detektor 2	Detektor 1	Detektor 2
0,0	1,0	1,0	100 %	100 %
0,1	1,5	1,4	65 %	72 %
0,2	2,0	1,8	49 %	56 %
0,3	2,6	2,2	39 %	45 %
0,4	3,1	2,6	32 %	38 %
0,5	3,7	3,1	27 %	32 %

Zur Kontrolle wurde eine weitere Simulation durchgeführt, in der die Aktivität homogen in einer fiktiven Luftschicht mit einer Dichte 3,6 g/cm³ (identisch zu NaI) angeordnet ist. Mit dieser Simulation wurde geprüft, ob neben dem Massenschwächungskoeffizienten auch die Dichte einen relevanten Einfluss auf die Eigenabschirmung hat. Der Schwächungsfaktor bei unterschiedlich dicken Luftschichten betrug aber kontinuierlich 1,0. Hierdurch wird gezeigt, dass die Abschirmwirkung bei NaI ausschließlich auf den atomaren Eigenschaften des Iods beruht.

10.1.6 Praktische Relevanz

Wie die Modellierung in Abschnitt 10.1.3 zeigt, führt eine Schichtdicke von 100 μm zu einer Schwächung um ca. 30 %, so dass zu folgern ist, dass Schichtdicken von einigen 10 μm notwendig sind, um überhaupt eine merkliche Schwächung der Zählrate zu verursachen. Für die Bewertung der praktischen Relevanz ist daher die Abschätzung der Schichtdicke notwendig, die bei einer Kontamination mit I-125 auftreten könnte, in welcher die Aktivität im Bereich des Freigabewerts oder darunter liegt.

Von der hier vorliegenden verdünnten Lösung wurde ein Volumen von ca. 0,5 ml auf einen Handschuh appliziert. (Dies stellt ein im Vergleich zu realen Anwendungen in der Medizin relativ großes Volumen dar, da dort die Aktivitätskonzentration höher ist und somit zum Erreichen einer Kontamination in Höhe des Freigabewerts eine geringere Flüssigkeitsmenge notwendig ist.)

Die im vorliegenden Experiment vorhandene Volumenkonzentration von NaI in der Lösung lag bei 0,06 mg/ml (die übrigen Anteile der Lösung bestanden aus Natriumsulfit und Wasser), so dass eine Masse von 0,03 mg auf den Handschuh appliziert wurde. Diese Masse trocknet bei einer Dichte von 3,6 g/cm³ von NaI auf einer Fläche von 100 cm² auf eine Schicht einer Dicke von $8,3 \cdot 10^{-8}$ cm bzw. 0,0008 μm ein. Diese Schichtdicke ist um Größenordnungen zu gering, um eine Abschirmwirkung gemäß der in Abschnitt 10.1.3 beschriebenen Art zu erzeugen. Selbstabsorption der Gammalinie durch die Kontaminationsschicht aus NaI spielt für I-125 somit keine Rolle.

11 Anhang D: Durchführung der Versuche mit Cr-51

Die Messungen an mit Cr-51 kontaminierten Verbrauchsmaterialien, die in gleicher Weise wie die in Abschnitt 3.1.8 und 3.1.12 an I-125 und Lu-177 durchgeführt wurden, zeigten keine im Hinblick auf die Freigabe auswertbaren Resultate. Diese Messungen wurden daher nicht im Hauptteil dieses Berichts dargestellt, um den logischen Fluss nicht zu stören.

11.1.1 Grundlagen zur Freigabe von mit Cr-51 kontaminierten Reststoffen

Für Cr-51 gelten die folgenden Randbedingungen:

- massenspezifischer Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 3 StrlSchV: 100 Bq/g
- flächenspezifischer Freigabewert nach Anl. 4 Tab. 1 Sp. 5 StrlSchV: 100 Bq/cm²
- Oberflächenansprechvermögen¹¹ bzw. Detektorwirkungsgrad für CoMo 170: 0,9 %

11.1.2 Kontamination der Verbrauchsmaterialien

Die Durchführung der Versuche erfolgte hinsichtlich der Kontamination der Verbrauchsmaterialien und der Messung (Messaufbau, Messzeit) identisch zur Messung von I-125, also wie in Abschnitt 3.1.10 beschrieben. Wegen der zum Versuchszeitpunkt (30.06.2021) zur Verfügung stehenden geringen Restaktivität wurde die vorhandene Lösung unverdünnt angewendet. Diese Lösung enthielt zum Zeitpunkt der Herstellung am 19.11.2020 (Referenzdatum) 1,05·10⁵ Bq in 0,76 ml. Zum Versuchszeitpunkt war die Aktivität auf 396 Bq abgeklungen (Halbwertszeit 27,7 d, Zeitraum 223 d).

Insgesamt wurden die Versuche an folgenden Testobjekten durchgeführt:

- 2 Handschuhe, Kontamination mit je 0,3 ml.

Die pro Handschuh applizierte Aktivität liegt somit bei 156 Bq. Aufgrund der geringen Restmenge wurden keine Papiertücher kontaminiert.

11.1.3 Messergebnisse

In Tabelle 16 sind die Messergebnisse dargestellt. Die applizierte Aktivität berechnet sich aus der gemessenen Aktivität und der HWZ von 27,7 Tagen.

¹¹ Der Wert des Oberflächenansprechvermögens für den CoMo 170 beruht auf Herstellerangaben (Fa. Nuvia). Dieser Wert ist auch konsistent zu Angaben anderer Hersteller (z. B. für den LB124 und den A-100).

Tabelle 16: Ergebnisse der Messungen mit Cr-51 (Messwerte hervorgehoben)

	Handschuh 1	Handschuh 2
Masse Testobjekt [g]	6,459	6,372
Resultierender Freigabewert [Bq]	646	637
Applizierte Menge [ml]	0,3	0,3
Applizierte Aktivität [Bq]	156	156
Messzeit Nulleffekt [s]	120	120
Nulleffekt [ips]	10,6	10,6
Messzeit Entscheidungsmessung [s]	20	20
Bruttoeffekt Vorderseite (VS) [ips]	12,7	10,9
Bruttoeffekt Rückseite (RS) [ips]	nicht gemessen	11,1
Gemessene Aktivität VS [Bq]	nicht angebar	
Gemessene Aktivität RS [Bq]	nicht angebar	

Die pro Handschuh applizierte Aktivität liegt bei ca. 25 % des Freigabewerts. Bei einer Effizienz des Kontaminationsmonitors von 0,9 % entspräche die auf einem Handschuh maximal zulässige Aktivitätsmenge von 646 Bq, verteilt auf eine Fläche von 100 cm² unter dem Messgerät, einer Zählrate von ca. 6 lps (netto). Da im vorliegenden Fall jedoch nur ca. ¼ dieser Aktivität appliziert werden konnte, liegt die zu erwartende Nettozählrate bei lediglich ca. 1,5 lps.

Das Messsignal (Bruttoeffekt) unterscheidet sich nicht signifikant vom Nulleffekt. Für Handschuh 1 wird ein Nettoeffekt von 2,1 lps und für Handschuh 2 zwischen 0,3 lps und 0,5 lps ermittelt. Beide Werte liegen innerhalb des Schwankungsbereichs der Nulleffektzählrate. Die zu erwartenden Nettozählrate kann somit nicht nachgewiesen werden, weshalb auch der Nachweis der applizierten Cr-51-Aktivität nicht erfolgt ist.

Aufgrund des sehr geringen Oberflächenansprechvermögens ist ein direkter Nachweis der Einhaltung von Freigabewerten für Cr-51 mit dem hier vorgesehenen Messverfahren nicht möglich.

