

Methoden zur Freigabe in der Nuklearmedizin

Schriftenreihe, Heft 9/2023



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

M. Sc. Rebekka Gehr, Dr. Stefan Thierfeldt
Brenk Systemplanung GmbH, Aachen

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung	7
2	Gliederung des Forschungsvorhabens und des vorliegenden Gesamtberichts	8
3	Ergebnisse des Arbeitspakets 1	9
3.1	Nuklearmedizinisch relevante Radionuklide mit langlebigen Verunreinigungsnukliden	9
3.2	Datenerhebung	9
3.3	In den nuklearmedizinischen Einrichtungen gehandhabte Radionuklide	10
3.4	Messgeräte	10
3.5	Schlussfolgerungen hinsichtlich des zu entwickelnden Freimessverfahrens	11
4	Ergebnisse des Arbeitspakets 2	12
4.1	Aufgabestellung	12
4.2	Messverfahren	12
4.3	Entscheidungsbaum	12
4.4	Abfallsortierung	13
4.5	Bezugsmasse für Abfälle bei Anwesenheit von Restflüssigkeiten	13
4.6	Wahl des Freigabeverfahrens in Abhängigkeit von der Strahlungsart	14
4.6.1	Übersicht	14
4.6.2	Alphastrahler	14
4.6.2.1	Grundlagen für die Bilanzierung	14
4.6.2.2	Bilanzierung der Gesamtaktivität	14
4.6.2.3	Möglichkeiten für die Direktmessung von flüssigen Anteilen im Abfall	15
4.6.3	Betastrahler	16
4.6.3.1	Messbarkeit mit Kontaminationsmonitor	16
4.6.3.2	Grundlagen für die Bilanzierung	16
4.6.3.3	Bilanzierung der Gesamtaktivität	17
4.6.4	Gammastrahler	17
4.6.4.1	Messverfahren	17
4.6.4.2	Weitere Vorgehensweise	17
4.7	Rechnerische Bestimmung der Aktivität bei Tc-99m/Tc-99	17
5	Ergebnisse des Arbeitspakets 3	19
5.1	Aufgabenstellung und Versuchsplan	19
5.2	Messungen für beta- sowie beta-/gammastrahlende Radionuklide	20
5.2.1	Kontamination von Verbrauchsmaterialien	20
5.2.2	Messergebnisse und Vorgehensweise zu deren Auswertung	20
5.2.3	I-125	21
5.2.4	Lu-177 / Lu-177m	23
5.2.5	Unsicherheiten im Rahmen der Versuchsdurchführung	24
5.2.6	Restkontamination von Spritzen und Behältern	24
5.3	Messungen für alphastrahlende Radionuklide	25

6	Handlungsanleitungen für Freigabemessungen	27
6.1	Kompensationsfaktor für Freigabemessungen in nuklearmedizinischen Einrichtungen.....	27
6.2	Handlungsanleitung zur Freigabe von beta-/gammastrahlenden Radionukliden auf Grundlage von Direktmessungen.....	28
6.3	Handlungsanleitung zur Freigabe von beta-/gammastrahlenden Radionukliden bei rechnerischer Aktivitätsbestimmung des freigaberelevanten Radionuklids auf Grundlage von Messungen	30
6.4	Handlungsanleitung zur Freigabe für alphastrahlende Radionuklide	31
6.5	Fazit	32
Anlage 1gesondertes Heft: siehe Schriftenreihe, Heft 9/2023, Anlage 1	
Anlage 2gesondertes Heft: siehe Schriftenreihe, Heft 9/2023, Anlage 2	
Anlage 3gesondertes Heft: siehe Schriftenreihe, Heft 9/2023, Anlage 3	

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Verbrauchsmaterial und gezielte Kontamination.....	20
Abbildung 2: Messungen mit einem Kontaminationsmonitors vom Typ CoMo 170.....	20

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Relevante Nuklide gemäß ergänzter Aufstellung des LfULG	9
Tabelle 2: Nuklidspezifische Aktivitätsverteilung aus der Umfrage	10
Tabelle 3: Messgerätetypen in nuklearmedizinischen Privatpraxen und Einrichtungen und Kliniken ...	10
Tabelle 4: Ergebnisse der Messungen an mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien.....	22
Tabelle 5: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuh en und Papier- tüchern für I-125 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz η	22
Tabelle 6: Ergebnisse der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien	23
Tabelle 7: Berechnung der Messergebnisse aus den Messungen von Handschuhen und Papier- tüchern für Lu-177 mit auf Abstand und Abschirmung korrigierten Werten der Effizienz.....	24
Tabelle 8: Empfohlene Werte für den Kompensationsfaktor für Messungen mit Kontaminations- monitor mit Plastiksintillator für verschiedene Arten von Wirknukliden mit und ohne Abschirmung.....	27

Abkürzungsverzeichnis

BS	Brenk Systemplanung GmbH
HWZ	Halbwertszeit
IAEA	International Atomic Energy Agency
LfULG	Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
LSC	Liquid Scintillation Counter
MCNP	Monte-Carlo N-Particle Transport Code
MVZ	medizinische Versorgungszentren
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung

1 Einleitung und Zielsetzung

Das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG) hat die Brenk Systemplanung GmbH (BS) mit der Durchführung eines Forschungsvorhabens mit dem Titel „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 Freigabebeanträge aus der Nuklearmedizin 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 unter die Freigabewerte für die uneingeschränkte Freigabe gem. Anlage 4 Tabelle 1 Spalte 3 Strahlenschutzverordnung (kurz: 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, die aufgrund der Herstellungsprozesse neben dem eigentlichen Wirknuklid weitere Nuklide (Verunreinigungs-nuklide) enthalten. Dabei können die Halbwertszeiten der Verunreinigungs-nuklide bedeutend länger als die des Wirknuklids sein. In diesem Fall können innerhalb einer praktikablen Zeitspanne die Freigabewerte nicht durch alleinige Abklinglagerung erreicht werden. Die Freigabe ist daher nur durch einen messtechnischen Nachweis oder einem kombinierten Ansatz aus rechnerischen und messtechnischen Verfahren möglich.

Alternativ zur Freigabe können die radioaktiven Reststoffe aus der Anwendung von Radiopharmaka mit langlebigen Verunreinigungen als radioaktiven Abfall an eine Landessammelstelle abgegeben werden. Dies ist jedoch mit hohen Kosten und erheblichem verwaltungstechnischen Aufwand verbunden, sodass insbesondere kleinere Privatpraxen dann Therapien mit solchen Radiopharmaka nicht anbieten können. Hierdurch kann die Situation entstehen, dass Therapien mit bestimmten Radiopharmaka, die keinen stationären Aufenthalt des Patienten erfordern, zukünftig nur noch in großen zentralen Einrichtungen verfügbar wären, obwohl sie aus medizinischer Sicht auch in kleineren Praxen und damit flächendeckend angeboten werden könnten. Eine solche Entwicklung wäre nicht zum Wohle der Patienten.

Gegenstand dieses Vorhabens ist daher die Entwicklung von Freigabeverfahren bzw. Freigabemessverfahren unter Berücksichtigung der messtechnischen und organisatorischen Durchführbarkeit speziell für Radiopharmaka mit einem produktionsbedingten Anteil langlebiger Radionuklide. Diese Verfahren sollen die Möglichkeit einer Freigabe auch für kleinere Anwender eröffnen, so dass die hohen, für eine kleine nuklearmedizinische Einrichtung u. U. betriebswirtschaftlich nicht tragbaren Kosten für die Entsorgung der radioaktiven Reststoffe bei einer Landessammelstelle vermieden werden.

2 Gliederung des Forschungsvorhabens und des vorliegenden Gesamtberichts

Das Forschungsvorhaben gliederte sich in drei Arbeitspakete:

- AP 1: Analyse der Randbedingungen, insbesondere Zusammenfassung der in nuklearmedizinischen Privatpraxen vorhandenen Messtechnik inkl. deren physikalischer Charakterisierung bzgl. der Nachweiseigenschaften,
- AP 2: Bestimmung eines optimierten und rechtskonformen Freigabemessverfahrens, insbesondere Erstellung realisierbarer Messszenarien unter Bedingungen, wie sie in nuklearmedizinischen Privatpraxen gegeben sind, und Festlegung eines optimierten Freigabemessverfahrens,
- AP 3: Charakterisierung des in AP 2 entwickelten Freigabemessverfahrens.

Zu jedem Arbeitspaket wurde auftragsgemäß ein eigenständiger Bericht erstellt und mit dem LfULG abgestimmt.

Der vorliegende Gesamtbericht stellt die Ergebnisse der drei Arbeitspakete in Kurzform dar. Er gliedert sich dabei wie folgt:

Abschnitt 3 stellt die Ergebnisse des Arbeitspakets 1 dar und geht hierbei insbesondere auf die Resultate der Abfrage der in nuklearmedizinischen Privatpraxen gehandhabten Radionukliden und der dort verfügbaren Messtechnik ein.

Abschnitt 4 stellt Vorgehensweisen zum Nachweis der Einhaltung von Freigabewerten für Gruppen von Radionukliden vor und fasst damit die Ergebnisse des Arbeitspakets 2 zusammen.

Abschnitt 5 stellt die im Rahmen des Arbeitspakets 3 durchgeführten Messungen vor, mit denen die Anwendbarkeit der in AP 2 entwickelten Freigabeverfahren nachgewiesen wurde.

Abschnitt 6 stellt die im Rahmen dieses Forschungsvorhabens erarbeiteten Handlungsanleitungen für die Freigabe zusammen. Diese stellen das wesentliche Ergebnis des Forschungsvorhabens dar.

In den Berichten zu den Arbeitspaketen ist die jeweils zitierte Literatur in Literaturverzeichnissen aufgeführt. Im vorliegenden Hauptteil werden Zitate direkt im Text angegeben.

3 Ergebnisse des Arbeitspakets 1

3.1 Nuklearmedizinisch relevante Radionuklide mit langlebigen Verunreinigungsnukliden

Wie eingangs ausgeführt, ist der wesentliche Gegenstand des Forschungsvorhabens die Entwicklung von Freigabeverfahren für nuklearmedizinisch relevante Radionuklide mit langlebigen Verunreinigungsnukliden, durch welche eine Freigabe durch Abklinglagerung in der Praxis verhindert wird. Eine Auflistung von in der Nuklearmedizin relevanten (Wirk-)Nuklide hat das LfULG als Eingangsdaten zu diesem Forschungsvorhaben zur Verfügung gestellt, die in der Auflistung in Tabelle 1 um Tc-99m, das in das langlebige Tc-99 zerfällt, sowie Ra-223, das aus dem Abtrennvorgang mit dem langlebigen Ac-227 verunreinigt ist, ergänzt wurde.

Tabelle 1: Relevante Nuklide gemäß ergänzter Aufstellung des LfULG

Wirknuklid	Bekannte Verunreinigungsnuklide
Sm-153	Eu-154
Ra-223+	Th-227, Ac-227+
Lu-177	Yb-175, Lu-177m
In-111	In-110, In-114m+
I-123	I-125, Te-121
Y-90	Sr-90+, Y-91, Y-88, Cr-51
Ga-68	Ge-68+
Tc-99	Tc-99m

3.2 Datenerhebung

Der wesentliche Bearbeitungsgegenstand des Arbeitspakets 1 bestand in der Erhebung der in radiologischen Privatpraxen vorwiegend gehandhabten Radionuklide und der dort üblicherweise verfügbaren Messtechnik, wobei der Schwerpunkt der Anfrage auf solchen Radionukliden lag, die langlebige Verunreinigungsnuklide im Sinne der Auflistung in Abschnitt 3.1 aufweisen. Hierzu erfolgte eine Fragebogenaktion, in deren Rahmen im Februar 2020 206 nuklearmedizinische Einrichtungen per E-Mail sowie auf dem Postweg kontaktiert wurden. Dabei wurde darauf geachtet, dass die kontaktierten Privatpraxen, Kliniken usw. das Spektrum der nuklearmedizinischen Einrichtungen abdecken, sodass 41 Universitätskliniken, 63 Kliniken/Krankenhäuser mit nuklearmedizinischer Abteilung, 27 medizinische Versorgungszentren (MVZ) und 75 Privatpraxen angeschrieben wurden. Weiterhin wurde die Fragebogenaktion mittels gezielter telefonischer Nachfragen unterstützt.

Der auswertbare Rücklauf betrug trotz Nachfassens bei den angeschriebenen Einrichtungen lediglich 9 %. Der auf verschiedentliche Nachfrage angegebene Grund hierfür war, dass viele der angeschriebenen Einrichtungen keine Wirk- oder Verunreinigungsnuklide anwenden, deren Halbwertszeit eine Freigabe durch Abklinglagerung ausschließen würden, so dass eine Antwort für dieses Forschungsvorhaben irrelevant gewesen wäre.

Die wesentlichen Ergebnisse der Datenerhebung sind in den beiden folgenden Abschnitten hinsichtlich der relevanten Radionuklide und hinsichtlich der verfügbaren Messgeräte zusammenfasst. Diverse weitere Details der Datenerhebung finden sich im Bericht zu AP 1.

3.3 In den nuklearmedizinischen Einrichtungen gehandhabte Radionuklide

Die Datenerhebung im Rahmen des Arbeitspakets 1 ergab die in Tabelle 2 wiedergegebenen Anteile an gehandhabten Radionukliden pro Quartal. Es ist erkennbar, dass Tc-99m den größten Umfang ausmacht.

Tabelle 2: Nuklidspezifische Aktivitätsverteilung aus der Umfrage

Nuklid	Menge [TBq]	Prozentualer Anteil	Nuklid	Menge [TBq]	Prozentualer Anteil
Tc-99m	238,9538	98,09 %	I-131	1,4241	0,58 %
I-125	0,0002	< 0,01 %	Sm-153	0,0127	< 0,01 %
Tl-201	0,0001	< 0,01 %	Er-169	0,0016	< 0,01 %
Lu-177	0,7880	0,32 %	Re-186	0,0018	< 0,01 %
Ra-223+	0,0402	0,02 %	F-18	1,4603	0,60 %
Y-90	0,5118	0,21 %	Ga-68	0,0350	0,01 %
I-123	0,0795	0,03 %	In-111	0,2884	0,12 %
			Summe	243,5974	100,0 %

Die Auswertung ergab ferner, dass F-18, Ga-68, Sm-153, Ra-223 und Lu-177 ausschließlich in (Universitäts-)Kliniken bzw. teilweise auch in medizinischen Versorgungszentren, die aber an ein großes Krankenhaus angebunden sind, zum Einsatz kommen. Privatpraxen bieten in erster Linie Untersuchungen mit Tc-99m, Y-90 und den in Tabelle 2 genannten Iod-Isotopen an. Die Nuklide Er-169 und Re-186 werden laut Umfrage darüber hinaus von medizinischen Versorgungszentren und Privatpraxen gehandhabt, die ebenfalls an große Krankenhäuser angebunden sind.

Die meisten Privatpraxen haben zwei, einzelne maximal vier Wirknuklide im Einsatz. Bei den großen Einrichtungen können es bis zu neun Wirknuklide sein.

3.4 Messgeräte

Im Rahmen der Datenerhebung wurden die in Tabelle 3 angegebenen Messgeräte genannt, wobei mit Ausnahme der Dosisleistungsmessgeräte und Hand-Fuß-Kleider-Monitore alle sonst genannten Messgeräte grundsätzlich für die Durchführung von Freigabemessungen geeignet sind.

Tabelle 3: Messgerätetypen in nuklearmedizinischen Privatpraxen und Einrichtungen und Kliniken

Messgerätetyp	Vorhanden in	Mittlere Stückzahl	Zur Freimessung grundsätzlich geeignet
Kontaminationsmonitor	alle	5	Ja
LSC	Nur Universitätskliniken	2	Ja
Freimessanlage (NaI- oder Plastikszintillatoren)	Kliniken, Universitätskliniken	1	Ja
Gammaskopie-Messplatz	Nur Universitätskliniken	2	Ja
Dosisleistungsmessgerät	alle	4	Nein
Hand-Fuß-Kleider-Monitor	alle	keine Angabe	Nein
Bohrlochmessplatz	alle	keine Angabe	Nein

3.5 Schlussfolgerungen hinsichtlich des zu entwickelnden Freimessverfahrens

Aus den Angaben in Tabelle 2 und Tabelle 3 wurden folgende Schlussfolgerungen hinsichtlich des in diesem Forschungsvorhabens zu entwickelnden Freimessverfahrens speziell für kleinere Anwender wie nuklearmedizinische Privatpraxen gezogen:

Im Vordergrund der Nutzung stehen beta- bzw. beta-gammastrahlende Radionuklide.

Aufgrund früherer gängiger, aber in vielen Fällen heute wegen aufwendiger Entsorgung aufgegebenener Nutzung ist Ra-223 weiterhin als alphastrahlendes Radionuklid relevant.

In allen nuklearmedizinischen Privatpraxen und Einrichtungen stehen Kontaminationsmonitore zur Verfügung, während alle anderen Arten von Messgeräten nicht allgemein vorausgesetzt werden können. Daher muss das Freimessverfahren auf die Anwendung von Kontaminationsmonitoren zugeschnitten sein.

Soweit anwendbar, sind auch rein auf Berechnungsverfahren basierende Freimessverfahren sinnvoll.

4 Ergebnisse des Arbeitspakets 2

4.1 Aufgabestellung

Das Arbeitspaket 2 des Forschungsvorhabens hatte die Bestimmung eines optimierten und rechtskonformen Freigabemessverfahrens zum Thema. Hierbei waren die wesentlichen Ergebnisse des Arbeitspakets 1 zu berücksichtigen, insbesondere die Basierung des Verfahrens auf einer in allen nuklearmedizinischen Privatpraxen und Einrichtungen voraussetzbaren und verfügbaren Messtechnik.

4.2 Messverfahren

Die Messverfahren, die für die Freigabe von Abfällen, wie sie in der Medizin aus der Anwendung von Radionukliden in Diagnostik und Therapie entstehen, prinzipiell geeignet sind, sehen grundsätzlich die Nutzung folgender Messgerätetypen vor:

- Kontaminationsmonitore,
- γ -Spektrometer, ggf. auch In-Situ-Gammaspektrometer,
- Fassmessanlagen und Freimessanlagen (basierend auf Gesamt- γ -Messungen) und
- Flüssigszintillationszähler (Liquid Scintillation Counter, LSC).

Derartige Messverfahren und ihre Anwendung für die Freigabe werden in den verschiedenen Teilen und Beiblättern der DIN 25457 im Detail beschrieben. Dort ebenfalls genannte weitere Verfahren (wie Wischtestentnahme und Auswertung in Wischtestmessplätzen oder Alphaspektrometrie nach Probenaufbereitung) sind für die hier relevanten Abfälle entweder nicht geeignet oder erfordern hohe apparative und präparative Voraussetzungen. In weiter Verbreitung verfügbar sind von dieser Liste lediglich die Kontaminationsmonitore, die in ausreichender Stückzahl in allen radiologischen Privatpraxen und Kliniken vorhanden sind. Daher wurde das Messverfahren für die Freigabe allein auf die Anwendung von Kontaminationsmonitore abgestellt.

Daneben wurden solche Radionuklide einbezogen, für die eine Freigabe trotz vergleichsweise langer Halbwertszeit allein auf Basis der Herstellerangaben zur Ausgangsaktivität sowie der rechnerischen Aktivitätsbestimmung möglich ist. Ein Beispiel ist die Freigabe von Tc-99m-Generatoren, bei denen die Extraktion des medizinisch wirksamen metastabilen Tc-99m aus zerfallendem Mo-99 erfolgt. Tc-99m wandelt sich in das wesentlich langlebigere Tc-99 um, welches ausschließlich für die Freigabe relevant ist, während Mo-99 und Tc-99m aufgrund der kurzen Halbwertszeiten in kurzer Zeit auf Aktivitäten unterhalb von Freigabewerten abklingen. Die Bestimmung der maximal möglichen massenbezogenen Aktivität des freigaberelevanten Tc-99 in den Abfällen aus jeder Anwendung am Patienten kann allein auf Basis der Anfangsaktivität des Mo-99, der Summe der entnommenen Aktivität von Tc-99m, der Summe der entnommenen Aktivität von Tc-99 und der zusätzlich aus dem entnommenen Tc-99m nachgebildeten Aktivität von Tc-99 erfolgen.

4.3 Entscheidungsbaum

Um die verschiedenen Freigabeverfahren, die insgesamt für radioaktive Reststoffe aus nuklearmedizinischen Privatpraxen und Einrichtungen anfallen können, zu systematisieren, wurde ein Entscheidungsbaum entworfen, welcher die Auswahl des geeigneten Freigabeverfahrens erleichtern soll. Das Ziel des Entscheidungsbaumes ist die systematische Abfrage von Entscheidungskriterien, um nach Durchlaufen eines Pfades entweder in der Situation zu sein, einen Freigabeantrag stellen zu können, oder aber die betreffenden Reststoffe als radioaktiven Abfall an die Landessammelstelle abzugeben. Nach mehreren allgemeinen Abfragen zu Halbwertszeiten und Verunreinigungen werden über die Zerfallsart vier Fallunterscheidungen getroffen, welche in die Pfade A, B, C und D münden:

Pfad A: Aktivitätsbestimmung für Alphastrahler,

Pfad B: Vorgehensweise zur Aktivitätsbestimmung im Abfall mittels β -Direktmessung,

Pfad C: Vorgehensweise zur Aktivitätsbestimmung im Abfall mittels Probenmessung,

Pfad D: Vorgehensweise zur Aktivitätsbestimmung im Abfall mittels gamma-emittierenden Radionukliden.

Für die meisten dieser Pfade werden weitere Fallunterscheidungen getroffen, die dann auf ein konkretes Freigabeverfahren oder aber auf die Entsorgung der radioaktiven Reststoffe bei einer Landessammelstelle führen.

4.4 Abfallsortierung

Für den Durchlauf des Entscheidungsbaums ist die wirknuklidreine Sortierung des Abfalls eine Randbedingung, die die messtechnische Bestimmung von Aktivität im Abfall bedeutend vereinfachen kann bzw. in Abhängigkeit des zu messenden Nuklids eine Messung erst ermöglichen kann. Eine wirknuklidreine Sammlung der Abfälle ist auch in kleinen Privatpraxen, die i. d. R. nicht mehr als 3 Wirknuklide einsetzen, unter räumlichen Kriterien anwendbar. Die Hinzufügung von Abfällen mit solchen Wirk- und ggf. Verunreinigungs-nukliden, für die die Freigabe allein durch Abklinglagerung aufgrund ihrer kurzen Halbwertszeit erwirkt werden kann, ist hierbei möglich und beeinflusst die Möglichkeit der Freigabe der wirknuklidrein sortierten Abfälle nicht.

Liegen im Radiopharmakon neben dem Wirknuklid Verunreinigungs-nuklide vor, so können deren radiologische Eigenschaften (z. B. Halbwertszeit, Höhe des Freigabewerts, messtechnische Nachweisbarkeit usw.) grundsätzlich die Freigabbarkeit und speziell das anwendbare Messverfahren für die Freigabemessungen beeinflussen.

Kann das Wirknuklid nicht ohne das Vorliegen von Verunreinigungs-nukliden produziert werden, so stellt ggf. allein die Halbwertszeit des Verunreinigungs-nuklids das Entscheidungskriterium darüber dar, ob die Freigabe auf Basis rechnerischer Nachweise mittels Abklinglagerung oder messtechnisch erfolgen kann.

4.5 Bezugsmasse für Abfälle bei Anwesenheit von Restflüssigkeiten

Ein wesentlicher Diskussionspunkt zur Bewertung der Aktivität in freizugebenden Abfällen ist in Deutschland seit einigen Jahren die Frage, wie kleine Restmengen von Flüssigkeiten (im Bereich einige ml oder cl) zu bewerten sind. Diese Flüssigkeiten werden bei der weiteren Behandlung der Abfälle nach Freigabe nicht abgetrennt, sondern verbleiben mit der Gesamtmenge der Abfälle gemeinsam bis zur Verbrennung oder Deponierung. Die radiologische Modellierung im zugehörigen SSK-Modell („Freigabe von Stoffen zur Beseitigung“, Empfehlung der Strahlenschutzkommission, verabschiedet in der 213. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 06. Dezember 2006, Berichte der Strahlenschutzkommission (SSK) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Heft 54 Gustav Fischer Verlag, 2007) unterscheidet nicht zwischen diesen Restflüssigkeiten und den übrigen festen Abfällen.

Die bei der Freigabe der Abfälle aus der Anwendung von Radiopharmaka zu berücksichtigende Bezugsmasse wird daher gebildet durch die Gesamtheit der in einem Abfallgebinde gesammelten Abfälle einschließlich der Umschließung (z. B. Abfallsack). Dies bezieht auch flüssige Abfälle (z. B. flüssige Rückstände in einem Vial, die nicht dem Patienten injiziert wurden, Rückstände in Spritzen u. dgl.) mit ein. Dies ist konform mit der SSK-Empfehlung „Therapeutische Verfahren in der Nuklearmedizin“ (verabschiedet im September 2022) und der in Veröffentlichung befindlichen Neufassung des Safety Guide RS-G-1.7 der International Atomic Energy Agency (IAEA).

Ferner gilt auch im Hinblick auf die Freigabe von Abfällen aus medizinischem Umgang die Mittelungsmasse von 300 kg gem. Anl. 4 Teil A Nr. 1 Buchst. c) StrlSchV. Das bedeutet, dass in jedem Fall über die

Masse in einem Abfallgebinde, das beispielsweise im jeweiligen Entsorgungszeitraum (z. B. 1 Monat) gefüllt wird und die den Bereich einiger 10 kg nicht überschreitet, gemittelt werden darf.

4.6 Wahl des Freigabeverfahrens in Abhängigkeit von der Strahlungsart

4.6.1 Übersicht

Die messtechnische Vorgehensweise richtet sich nach der Strahlungsart der für die Freigabe nachzuweisenden Radionuklide sowie ggf. nach der Form, in der sie vorliegen. Im Bericht zu Arbeitspaket 2 werden in einzelnen Abschnitten Details zu den folgenden Messmethoden diskutiert, soweit diese Freimessverfahren betreffen:

- α -Strahler (ohne signifikanten Anteil an β -Strahlung/ γ -Emission),
- β -Strahler,
- α - oder β -Strahler, bei denen beim Zerfall ein gut messbares Folgegammquant ausgesendet wird,
- γ -Emitter.

Wesentliche Punkte dieser Darstellungen werden in den folgenden Unterabschnitten kurz wiedergegeben. Sie fließen insbesondere in die Handlungsanleitungen ein, die in Abschnitt 6 dargestellt sind. Die Zielstellung aller hier dargestellten Verfahren besteht darin, die für die Freigabe relevante Gesamtaktivität in den Abfällen zu bestimmen, damit sie nach Division durch die Gesamtmasse der freizugebenden Abfälle mit den massenbezogenen Freigabewerten gem. Anl. 4 Tab. 1 StrlSchV für die entsprechende Freigabeoption verglichen werden können.

4.6.2 Alphastrahler

4.6.2.1 Grundlagen für die Bilanzierung

Die grundsätzliche Möglichkeit für die Bilanzierung der Aktivität in einer bestimmten Abfallmenge basiert auf folgenden Grundlagen:

- Es werden nur Abfälle, die Rückstände eines bestimmten Radiopharmakons beinhalten bzw. durch diese kontaminiert sind, in einem Abfallgebinde (Abfallsack, Sammelbehälter) gesammelt (zur Ausnahme von dieser Vorgehensweise siehe unten).
- Bei diesen Abfällen handelt es sich typischerweise um Vials mit flüssigen Rückständen des Radiopharmakons, um Handschuhe, Papiertücher und sonstige Gegenstände, die bei der Verabreichung des Radiopharmakons benutzt wurden, sowie um Kunststoffspritzen und gegebenenfalls Kanülen (mit Schutzkappe).
- Es wird eine Liste über die Anwendungen (einschließlich Termine) geführt, von denen entsprechende Abfälle in das Abfallgebinde eingelegt wurden. Jedes Abfallgebinde sollte dabei nur für einen festgelegten Zeitraum, zum Beispiel einen Monat, genutzt werden, damit sich die Bezugsdaten und die Abklingzeiten später zuordnen lassen.
- Werden hierbei Vials mit flüssigen Resten des jeweiligen Radiopharmakons in das Abfallgebinde eingelegt, so sollte ein solches Vial mit einem möglichst großen Restinhalt an einer gesonderten Stelle des Abfallgebundes verwahrt werden, damit es später leicht analysiert werden kann.

4.6.2.2 Bilanzierung der Gesamtaktivität

Zu einem bestimmten Zeitpunkt lässt sich die Aktivität in dem Abfallgebinde auf Basis der folgenden Schritte bilanzieren:

Die Aktivität in flüssiger Form in den Vials wird ermittelt als Produkt aus

- der abgeschätzten Restmenge (Volumen) in demjenigen Vial im Abfallgebinde, das die höchste Restmenge enthält,

- der volumenbezogenen Aktivitätskonzentration im Radiopharmakon auf Basis der jeweiligen Spezifikation, zerfallskorrigiert auf den Stichtag, für den die Aktivität bestimmt wird (siehe nachfolgend),
- einem Zuschlagsfaktor von z. B. 10 %, der berücksichtigt, dass bei der Anwendung ein kleiner Anteil des Radiopharmakons auf die Einmalhandschuhe des medizinischen Personals, auf Papiertücher und Ähnliches tropfen kann (zum Beispiel durch das Auspressen von Luft aus der Spritze nach der Aspiration, woraus sich auch die potentiell auf Verbrauchsmaterialien abgelagerte Aktivitätsanteil im Prozentbereich ergibt),
- und der Anzahl der Anwendungen, deren Abfälle im jeweiligen Abfallgebinde vereinigt sind.

Hierbei ist konservativ als Zeitraum für die Zerfallskorrektur die Differenz zwischen der spätesten Anwendung des Radiopharmakons, dessen Abfälle im jeweiligen Abfallgebinde enthalten sind, und dem Stichtag, für den die Aktivität bestimmt werden soll, anzunehmen. Hierdurch wird der Abklingzeitraum minimiert, d. h. der radioaktive Zerfall konservativ unterschätzt und die resultierende Aktivität dementsprechend überschätzt.

Der in der Auflistung genannte Zuschlagsfaktor muss für die jeweilige Art der Anwendung durch die Person, die in der Durchführung der Anwendungen erfahren ist, abgeschätzt werden. Die Vorgehensweise hierzu ist im Detail im Bericht zu Arbeitspaket 2 beschrieben und wird auch in der praktischen Anwendung in Arbeitspaket 3 erläutert.

4.6.2.3 Möglichkeiten für die Direktmessung von flüssigen Anteilen im Abfall

Die Aktivitätsbestimmung für alphastrahlende (sowie auch betastrahlende) Radionuklide kann in der im Folgenden beschriebenen Weise erfolgen, wenn die Aktivität hauptsächlich in flüssigen Anteilen des jeweiligen Radiopharmakons (vor allem in Form von Rückständen in Vials) vorliegt und eine Aktivitätsabschätzung alleine auf Basis der Spezifikation, wie sie in Abschnitt 4.6.2.2 dargestellt wurde, nicht zielführend ist. Die Basis für diese Abschätzung ist die Überführung eines repräsentativen Teils dieser flüssigen Anteile in eine leicht messbare Form. Dies lässt sich auf Basis der folgenden Schritte durchführen:

1. Der flüssige Inhalt desjenigen Vials, das im Abfallgebinde die höchste Restmenge enthält (hier genügt eine visuelle Bewertung), wird durch Öffnen des Vials und vorsichtiges vollständiges Ausleeren des Restinhalts auf ein saugfähiges, möglichst dünnes Papier in eine ebene Geometrie (analog einem Wischtestblättchen) überführt, welche eine Messung im Wischtestmessplatz oder unter einem Kontaminationsmonitor gestattet. Hierbei sollte das Papier möglichst großräumig benetzt werden. Die Flüssigkeitsmenge kann durch vor- und nachherige Wägung des Vials und/oder des Papiers bestimmt werden, wenn eine entsprechend feine Waage zur Verfügung steht. Andernfalls kann sie aus der Füllhöhe des Vials vor dem Entleeren in Relation zur bekannten maximalen Füllhöhe abgeschätzt werden. Dieser Schritt wird vorzugsweise im Abzug auf einer nicht saugfähigen Unterlage und mit Schutzhandschuhen ausgeführt.
2. Das benetzte Papier wird anschließend mit einer Pinzette oder mit der durch Schutzhandschuhe geschützten Hand gehandhabt. Vor der weiteren Verwendung wird sichergestellt, dass die flüssigen Rückstände vollständig eingezogen und getrocknet sind. Das ausgeleerte Vial wird anschließend in das Abfallgebinde zurückgegeben.
3. Das Papier wird in den Wischtestmessplatz oder unter den Kontaminationsmonitor überführt, und die Messung wird bezüglich der Alphaaktivität (und der Betaaktivität) durchgeführt.

4. Da durch diese Messung nur die Alpha-Gesamtaktivität erfasst wird, muss das Messergebnis auf alle potenziell vorliegenden alphastrahlenden Radionuklide aufgeteilt werden, um jeweils die korrekte Zuordnung von deren Aktivitäten zum jeweiligen Freigabewert zwecks Berechnung der Summenformel treffen zu können. Hierzu ist zunächst die Aktivität des Wirknuklids, welche sich unmittelbar unter Berücksichtigung des Volumens der ausgeleerten Flüssigkeitsmenge aus der Spezifikation nach entsprechender Zerfallskorrektur zum Tag der Messung entnehmen lässt, vom Messwert abzuziehen. Die rechnerisch verbleibende Aktivität ist den sonstigen alphastrahlenden Radionukliden zuzuordnen, die gemäß Spezifikation im Radiopharmakon enthalten sein können.

Die Gesamtaktivität im Abfallgebinde kann dann gemäß der in Abschnitt 4.6.2.2 dargestellten Vorgehensweise ermittelt werden.

Die praktische Durchführbarkeit dieser bisher in Deutschland für die Freigabe nicht praktizierten Messmethode wurde im Rahmen von AP 3 dieses Forschungsvorhabens bestätigt. Im Berichtsteil zu AP 2 sind die Vorgehensweise und die Ergebnisse für Messungen an Abfällen, die mit dem Radiopharmakon Xofigo® kontaminiert sind, beschrieben.

Weitere Details zur Durchführung der Messungen sind in Abschnitt 6 in Form von Handlungsanleitungen dargestellt.

4.6.3 Betastrahler

4.6.3.1 Messbarkeit mit Kontaminationsmonitor

Bei reinen Betastrahlern ohne Gammaemission aus einem Folgezerfall wird die erste Entscheidung über die Messbarkeit anhand der mittleren Beta-Energie als Grenzenergie getroffen, wobei Radionuklide mit mittleren Beta-Energien im Bereich um 100 keV und darüber für eine Messung mit Kontaminationsmonitor geeignet sind. Für rein betastrahlende Radionuklide mit niedrigeren Beta-Energien muss ggf. auf andere Messverfahren zurückgegriffen werden. Unter günstigen und genau definierten Randbedingungen sind auch Messungen bei deutlich geringeren Energien der Elektronen möglich, wie die im Rahmen von AP 3 dieses Forschungsvorhabens durchgeführten Messungen für I-125 zeigen (vgl. Abschnitt 5.2.3).

4.6.3.2 Grundlagen für die Bilanzierung

Bei den Abfällen mit reinen Betastrahlern ist zwischen innenliegender und außenliegender Kontamination zu unterscheiden. Als Abfälle mit innenliegender Kontamination werden alle Abfälle bezeichnet, bei denen die Kontamination auf der Innenseite vorliegt und dort von einer Materialschicht mit nicht unerheblicher Dicke (wie z. B. bei Einwegspritzen/Kanülen und Vials, Infusionsbeuteln und Schlauchsystemen) gegenüber dem Messgerät abgeschirmt wird. Es gilt ferner:

- Es werden nur Abfälle, die Rückstände eines bestimmten Radiopharmakons beinhalten bzw. durch diese kontaminiert sind, in einem Abfallgebinde (Abfallsack im Sammelbehälter) gesammelt.
- Bei diesen Abfällen handelt es sich typischerweise um Handschuhe, Papiertücher und sonstige Gegenstände, die bei der Verabreichung des Radiopharmakons benutzt wurden, sowie um Kunststoffspritzen mit Restflüssigkeitsmengen, gegebenenfalls Kanülen (mit Schutzkappe) und Vials.
- Es wird eine Liste über die Anwendungen (einschließlich Termine) geführt, von denen entsprechende Abfälle in das Abfallgebinde eingelegt wurden. Jedes Abfallgebinde sollte dabei nur für einen festgelegten Zeitraum, zum Beispiel einen Monat, genutzt werden, damit sich die Bezugsdaten und die Abklingzeiten später zuordnen lassen.

4.6.3.3 Bilanzierung der Gesamtaktivität

Das Messgut muss für die Messung in eine Geometrie gebracht werden, die einen möglichst ungehinderten Austritt der Betateilchen und gute Detektierbarkeit erlaubt. Hierzu müssen Handschuhe, Papiertücher u. dgl. ausgebreitet werden, damit sie der Messung mit dem Kontaminationsmonitor zugänglich werden. Restmengen an Flüssigkeiten können ggf. auf eine saugfähige Unterlage ausgeleert werden, damit sie dort nach Eintrocknen in ähnlicher Weise wie die Verbrauchsmaterialien gemessen werden können, oder ihre Aktivität kann über das Volumen bzw. die Masse der Restflüssigkeit bestimmt werden. Auf die verschiedenen Anforderungen an Messgut, Oberflächen und Geometrie wird für verschiedene Randbedingungen im Bericht zu Arbeitspaket 2 detailliert eingegangen. Diese Erwägungen fließen in die zur Durchführung der Messungen in Abschnitt 6 entwickelten Handlungsanleitungen ein.

4.6.4 Gammastrahler

4.6.4.1 Messverfahren

Für die Messung der Aktivität gamma-emittierender Radionuklide stehen neben der Anwendung von Kontaminationsmonitoren drei für den praktischen Alltag taugliche Messverfahren zum Nachweis der Unterschreitung von Freigabewerten zur Verfügung:

- Messung an repräsentativen Proben aus dem freizugebenden Abfall mittels eines Laborgammaspektrometers,
- Messung am gesamten Abfallgebinde (Abfallsack) mittels In-situ-Gammaspektrometrie,
- Messung am gesamten Abfallgebinde (Abfallsack) mittels einer Freimessanlage bzw. Freimesskammer.

Aus technischer Sicht wäre der Einsatz von gammaspektrometrischen Messmethoden unabhängig von der Größe einer nuklearmedizinischen Praxis oder Einrichtung möglich. Wie im Bericht zu AP 1 aber dargestellt, betragen die Investitionskosten für Gammaspektrometer und Freimessanlagen in der Basisausstattung bereits mindestens 30.000 €. Für kleine Privatpraxen stellt dies eine betriebswirtschaftlich grenzwertige Ausgabe dar. Demgegenüber ist die Probenentnahme und Messung (ggf. in einem externen Labor) wesentlich kostengünstiger möglich.

4.6.4.2 Weitere Vorgehensweise

Wenn die Messung mit einem Kontaminationsmonitor erfolgen soll, ist die Vorgehensweise analog zu derjenigen in Abschnitt 4.6.3 für Betastrahler zu wählen. Die zur Durchführung der Messungen in Abschnitt 6 entwickelten Handlungsanleitungen gelten analog.

4.7 Rechnerische Bestimmung der Aktivität bei Tc-99m/Tc-99

In bestimmten Fällen ist trotz des Vorliegens langlebiger Radionuklide, die einer Freigabe durch Abklinglagerung im Wege stehen würden, die Möglichkeit gegeben, die Freigabe auf eine rechnerische Bilanzierung zu gründen. Dies ist beispielsweise bei einem Tc-99m-Generator der Fall, bei dem die Extraktion des metastabilen Tc-99m aus zerfallendem Mo-99 erfolgt und bei dem das sehr langlebige Verunreinigungsnuklid Tc-99 durch Umwandlung des Tc-99m entsteht.

Die Tc-99m-Aktivität wird in einem Mo-99/Tc-99m-Generator gewonnen, in dem das Mo-99 ($t_{1/2} = 65,9$ h) zu 86 % zu Tc-99m ($t_{1/2} = 6$ h) und 14 % zu Tc-99 ($t_{1/2} = 211.100$ a) zerfällt. Pro Generator wird üblicherweise ein Elutionsvorgang vorgenommen. Wegen der chemischen Gleichartigkeit von Tc-99m und Tc-99 gehen beide Radionuklide ins Eluat über. In der klinischen Anwendung wird der Generator i. d. R. wöchentlich getauscht, da dann die Aktivität des Mo-99 so weit abgeklungen ist, dass nicht mehr genügend Tc-99m nachgebildet werden kann. Aufgrund des schnellen Abklingens der Aktivitäten von Mo-99 und Tc-

^{99m}Tc ist für die Freigabe nur die Aktivität von ^{99}Tc relevant. ^{99}Tc ist ein reiner β^- -Strahler, der mit einer HWZ von 211.000 Jahren zum stabilen ^{99}Ru zerfällt.

In Abhängigkeit der ^{99}Mo -Aktivität, die durch den Hersteller angegeben wird, und auf Basis der Tatsache, dass sämtliches ^{99}Tc , das zum Zeitpunkt der Aktivitätsentnahme vorhanden ist, ebenfalls ins Eluat geht, kann durch Einbezug der physikalisch/chemischen Eigenschaften die maximal aus einem Generator eluierbare Aktivität an ^{99}Tc bestimmt werden. In dieser Aktivität sind dann sowohl die Entstehung von ^{99}Tc aus dem direkten Zerfall von ^{99}Mo berücksichtigt als auch das durch Zerfall von ^{99m}Tc gebildete ^{99}Tc . Wird in einem zweiten Schritt postuliert, dass (konservativ) 10 % der eluierten und für die medizinische Anwendung vorbereiteten Aktivität im medizinischen Abfall verbleiben, ist damit die maximal mögliche ^{99}Tc -Aktivität im Abfall für die Einsatzdauer eines Generators bekannt. In den Privatpraxen und Kliniken ist ferner bekannt, wie viele Anwendungen im Mittel am Patienten während der Lebensdauer eines Generators durchgeführt werden. Berücksichtigt man eine pro Anwendung entstehende typische Abfallmenge von z. B. 50 g, kann damit die spezifische Aktivität in der Einheit Bq/g im Abfall bestimmt werden.

Das vollständige Berechnungsbeispiel ist in Abschnitt 3.3.7 des Berichts zu Arbeitspaket 2 dargestellt.

5 Ergebnisse des Arbeitspakets 3

5.1 Aufgabenstellung und Versuchsplan

Das Arbeitspaket 3 diente der Verifikation der Ergebnisse des Arbeitspakets 2 durch Messverfahren. Gleichzeitig konnten die Erfahrungen mit der praktischen Durchführung der Messungen dazu genutzt werden, Details der Vorgehensweise bei den einzelnen Freigabemessverfahren, die bereits im Rahmen von AP 2 abgeleitet worden waren, aus praktischer Sicht zu verfeinern. Vor diesem Hintergrund wurden Messungen durchgeführt, die zum Ziel hatten, die praktische Durchführbarkeit von Messungen zur Freigabe unter Bedingungen, die typischen Situation speziell in nuklearmedizinischen Privatpraxen entsprechen sollten, zu demonstrieren und hierbei vor allem eine Aussage über die Detektierbarkeit der auf typischen Verbrauchsmaterialien vorliegenden Aktivität zu treffen.

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 wurden die folgenden Radionuklide für die Messungen ausgewählt:

- I-125 mit einer Halbwertszeit von 59,4 d,
- Lu-177m mit einer Halbwertszeit von 6,6 d, das Verunreinigungen durch Lu-177m mit einer Halbwertszeit von 160,3 d trägt.

Hierdurch werden verschiedene beta- und gammastrahlende Radionuklide verschiedener Energiebereiche und Emissionswahrscheinlichkeiten berücksichtigt. Die ursprünglich ebenfalls vorgesehenen Messungen an Cr-51 mit einer Halbwertszeit von 27,7 d konnten im Rahmen dieses Forschungsvorhabens aus organisatorischen und technischen Gründen nicht realisiert werden.

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.

Für diese Messungen kommt ausschließlich ein Kontaminationsmonitor zum Einsatz, da in radiologischen Privatpraxen lediglich das Vorliegen dieses Messgeräts vorausgesetzt werden kann, wie in Arbeitspaket 1 dieses Vorhabens gezeigt wurde.

Die Zielsetzung der Messungen mit Kontaminationsmonitor (Typ CoMo170 bzw. CoMo 300) lässt sich wie folgt zusammenfassen:

- Es wird grundsätzlich nachgewiesen, dass Kontamination aus den genannten Radionukliden auf typischen Verbrauchsmaterialien wie Kunststoffhandschuhe, Zellstofftücher, Nierenschalen aus Pappe usw. sicher bestimmt werden kann.
- Für die Durchführung der Messungen wurde 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 durchzuführenden Messungen belegen damit bei Nachweis der Kontamination, dass das gewählte Messverfahren für die Entscheidungsfindung über die Einhaltung von Freigabewerten geeignet ist.
- Durch geeignete Auswahl des Messguts und Hochrechnung der Aktivität auf die gesamte Abfallmenge 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.

Zusätzlich wurden die Ergebnisse von Messungen an mit dem alpha-strahlenden Radionuklid Ra-223 kontaminierten Materialien herangezogen, die bei der Bayer Pharma AG durchgeführt wurden und die zur weiteren Auswertung und Nutzung in diesem Forschungsvorhaben freundlicherweise zur Verfügung gestellt wurden. Diese Messungen erfolgten mit dem Ziel, insbesondere die Aktivität von Restflüssigkeitsmengen in Vials, welche den Hauptanteil der Aktivität in freizugebenden Abfallchargen bildet, einer Messung mit Kontaminationsmonitor zugänglich zu machen.

5.2 Messungen für beta- sowie beta-/gammastrahlende Radionuklide

5.2.1 Kontamination von Verbrauchsmaterialien

Messungen wurden an Handschuhen und Papiertüchern durchgeführt, welche die beiden Arten von Verbrauchsmaterialien darstellen, die im medizinischen Alltag die höchste Wahrscheinlichkeit für eine Kontamination haben. Hierzu wurden diese Materialien mit einer genau bestimmten Aktivitätsmenge des jeweiligen Radionuklids bzw. Verunreinigungsnuclides kontaminiert. Diesen Vorgang zeigt Abbildung 1.



Abbildung 1: Verbrauchsmaterial und gezielte Kontamination



Abbildung 2: Messungen mit einem Kontaminationsmonitor vom Typ CoMo 170

5.2.2 Messergebnisse und Vorgehensweise zu deren Auswertung

Die Messung der Kontamination der Verbrauchsmaterialien ist in Abbildung 2 dargestellt. Die Versuchsdurchführung fand im hauseigenen Kontrollbereich statt. Handschuhe und Papiertücher wurden, wie in Abschnitt 5.2.1 beschrieben, mit einer genau bekannten Aktivitätsmenge flächig kontaminiert. Nach dem Eintrocknen erfolgte die Messung der Objekte mit dem Kontaminationsmonitor.

Bei allen Messungen sind die im Folgenden beschriebenen Aspekte relevant:

- In allen Messergebnissen wurden Bruttozählraten bestimmt, die um den Nulleffekt korrigiert und in Aktivitäten umgerechnet wurden.
- Es wird jeweils untersucht, ob die Messung zum Nachweis der Einhaltung des Freigabewerts für das jeweilige Nuklid für die uneingeschränkte Freigabe im Sinne von DIN 25457-1 geeignet ist.
- Die Messungen mit dem Kontaminationsmonitor erfolgten mit Abstandshaltern von 1 cm Stärke. Hierdurch wurde ein Abstand von einigen mm zwischen Messgutoberfläche und Eintrittsfenster des Kontaminationsmonitors sichergestellt. Im Mittel
- Die Messungen der Zählrate erfolgten an Vorder- und Rückseite aller Messobjekte.
- Die Effizienz des Kontaminationsmonitors wird vom Hersteller für ideale Bedingungen für Messungen in direktem Kontakt zwischen Kontaminationsmonitor und Messgut angegeben. Die beiden vorgenannten Punkte (Abstand und ggf. Abschirmung durch Messgut bei rückseitiger Messung) verschlechtern die Effizienz jedoch. Daher erfolgt eine Korrektur der Effizienz auf die realen Messbedingungen anhand von detaillierten Simulationsrechnungen mit der MCNP (Monte-Carlo N-Particle Transport Code).
- Für alle Messungen wird eine vollständige Betrachtung der Typ-A- und der Typ-B-Messunsicherheiten (letztere umfassen Unsicherheiten des Abstands, der Flächenverteilung der Aktivität, der Dicke der wirksamen Abschirmschicht u.a.m.) durchgeführt.

Aus dem Vergleich der Aktivität, die unter (fehlerhafter) Verwendung der Herstellerangaben für die Effizienz (für ideale Bedingungen, d. h. Kontaktmessung und ohne Berücksichtigung der Messunsicherheiten) berechnet wird, und derjenigen Aktivität, die bei korrekter Berücksichtigung aller Einflussfaktoren (Abstand, ggf. Abschirmung durch das Messgut) berechnet wird, lässt sich für die bei den erfolgten Messungen festgelegte Geometrie abschließend ein Kompensationsfaktor herleiten. Wird die Messung im Rahmen der Freigabe in der nuklearmedizinischen Praxis unter Einhaltung der Geometrie der Messungen der BS und unter Anwendung der Herstellerangabe zur Effizienz durchgeführt und wird die bei der Messung ermittelte Aktivität mit dem zugehörigen Wert des Kompensationsfaktors multipliziert, erhält der Anwender eine konservative Abschätzung der wahren Aktivität auf dem Messgut, die zur Verwendung im Freigabeverfahren geeignet ist.

5.2.3 I-125

I-125 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 59,4 d 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 und niederenergetischer Elektronen in das stabile Te-125.

Das I-125-Präparat wurde von der Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH bezogen. Diese Referenzaktivität wurde im Zertifikat der PTB mit $(24,0 \pm 0,6)$ kBq/g angegeben. Im Rahmen der Versuche wurden zwei Einweghandschuhe aus Latex/Nitril sowie zwei Papiertaschentücher gezielt mit Iod-125 in einer wässrigen Lösung kontaminiert. Die applizierten Aktivitäten und Messergebnisse sind in Tabelle 4 angegeben.

Tabelle 4: Ergebnisse der Messungen an mit I-125 kontaminierten Verbrauchsmaterialien

	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

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 6 mm zwischen Messgut und Detektorfläche sowie bei rückseitiger Messung bzgl. der abschirmenden Schicht (Handschuhmaterial Latex bzw. Papier) korrigiert werden. Der für Vorder- und Rückseitenmessung nahezu identische Messwert rührt von den von I-125 emittierten Photonen im Energiebereich 30 bis 35 keV her, die durch das Material praktisch nicht abgeschirmt werden, während niederenergetischere Elektronen bereits durch die Mylarfolie des Detektoreintrittsfensters abgefangen und niederenergetischere Photonen so stark geschwächt werden, dass sie im Detektor nur noch als Rauschen interpretiert und daher nicht zum Messsignal gezählt werden. Man berechnet für Vorder- und Rückseitenmessungen eine wahre Effizienz für die jeweilige Messgeometrie von 6,4 %, so dass die Messergebnisse aus Tabelle 4 wie in Tabelle 5 angegeben zu interpretieren sind.

Tabelle 5: 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 95

Die applizierten Aktivitäten können somit durch diese Auswertung sehr gut reproduziert werden. Würden die Messergebnisse aus Tabelle 4 in fehlerhafter Anwendung der vom Hersteller angegebenen Effizienz 12 % interpretiert werden, würde die applizierte Aktivität um bis zu 50 % unterschätzt werden. Dies bedeutet, dass für I-125 ein Kompensationsfaktor von mind. 2 anzuwenden ist.

5.2.4 Lu-177 / Lu-177m

Lu-177m zerfällt mit einer Halbwertszeit von 160,9 d mit einer Wahrscheinlichkeit von 77,4 % durch Beta-Zerfall (Endpunktenergie 152,5 keV) in das stabile Hf-177 und mit einer Wahrscheinlichkeit von 22,6 % durch innere Umwandlung (Energien der Gammaquanten mit den drei höchsten Emissionswahrscheinlichkeiten 17 %, 10 % und 6 % bei 413,7 keV, 319,0 keV und 121,6 keV) in den Grundzustand Lu-177.

Lu-177 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 6,7 d durch Betazerfall (Endpunktenergien 498 keV, 385 keV und 177 keV mit abnehmenden Wahrscheinlichkeiten) in das stabile Hf-177.

Das Lu-177-Präparat wurde vom Universitätsklinikum Aachen zur Verfügung gestellt. Eine sorgfältige Eingangsmessung in der Laborgammaspektrometrie der Brenk Systemplanung GmbH bestätigte die Aktivitätsangabe des Universitätsklinikums sehr gut (eine solche Eingangsmessung ist nicht Bestandteil eines späteren Freigabeverfahrens, sondern wurde hier zwecks Kontrolle der Aktivität durchgeführt). Handschuhe und Papiertücher wurden, wie in Abschnitt 5.2.1 beschrieben, mit einer genau bekannten Aktivitätsmenge flächig kontaminiert und gemessen. Die applizierten Aktivitäten und Messergebnisse sind in Tabelle 6 angegeben.

Tabelle 6: Ergebnisse der Messungen an mit Lu-177 und Lu-177m kontaminierten Verbrauchsmaterialien

	Handschuh 1	Handschuh 2	Handschuh 3	Papiertuch 1	Papiertuch 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

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 sowie bei rückseitiger Messung bzgl. der abschirmenden Schicht (Handschuhmaterial Latex bzw. Papier) korrigiert werden. Für den Messabstand ohne weitere Abschirmung errechnet man eine Effizienz von 29 %, für eine zusätzliche Abschirmung von 200 μ m Handschuhmaterial (2 Lagen) eine Effizienz von 7,4 %. Die unterschiedlichen Effizienzen für Vorder- und Rückseitenmessungen resultieren insbesondere aus der Abschirmung dervon Lu-177 emittierten Elektronen. Die Messergebnisse aus Tabelle 6 sind wie in Tabelle 7 dargestellt zu interpretieren.

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]
<i>Effizienz</i>		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

Die applizierte Aktivität kann somit bei vorder- und bei rückseitigen Messungen relativ gut reproduziert werden. Würden die Messergebnisse aus Tabelle 6 in fehlerhafter Anwendung der vom Hersteller angegebenen Effizienz 35 % interpretiert werden, würde die applizierte Aktivität bei vorderseitigen Messungen um einen Faktor 1,5, bei rückseitigen Messungen jedoch um bis zu einem Faktor 6 (doppellagiges Handschuhmaterial) bzw. einem Faktor 4 (einlagiges Handschuhmaterial) unterschätzt werden.

Das eigentliche 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. Aufgrund der Kenntnis des Aktivitätsverhältnisses der beiden Radionuklide Lu-177 und Lu-177m, welches bei der praktischen Anwendung aufgrund der Spezifikation bekannt ist (und bei den hier durchgeführten Messungen sich außerdem aus der durchgeführten Eingangsmessung ableiten lässt), kann die Ableitung der Aktivitätsangabe für Lu-177m aus dem Ergebnis der Messung von Lu-177 erfolgen.

5.2.5 Unsicherheiten im Rahmen der Versuchsdurchführung

Unsicherheiten im Rahmen der Versuchsdurchführung betreffen beispielsweise die Bestimmung der spezifischen Aktivität der Kontaminationslösungen, die Bestimmung der potentiellen Aktivität in Spritzen, die Schwankung des Nulleffekts, die Bestimmung der applizierten Flüssigkeitsmenge (in welcher die Kontamination gelöst ist), die Geometrie bei der Messung, die Messgeräte selbst, die Abschirmung. Während diese bei den genau definierten Versuchsbedingungen klein gehalten werden konnten, wird in der praktischen Durchführung vor allem die geometrische Verteilung der Kontamination eine Rolle spielen. Der Bericht zu Arbeitspaket 3 enthält eine detaillierte Diskussion dieser Punkte. Sie werden durch den Kompensationsfaktor (s. Abschnitt 6.1) mit abgedeckt.

5.2.6 Restkontamination von Spritzen und Behältern

Im Unterschied zu den zuvor betrachteten, ggf. oberflächlich kontaminierten Verbrauchsmaterialien wie Handschuhe, Papiertücher u. dgl. stellen auch die Spritzen, mit denen das Radiopharmakon appliziert wurde, einen Bestandteil des Abfalls dar. Die in Spritzen verbleibende Aktivität kann nicht durch Messungen mit Kontaminationsmonitor bestimmt werden, sondern muss über das Flüssigkeitsvolumen und den (bekannten) massen- oder volumenbezogenen Aktivitätsgehalt berechnet werden.

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. Die Masse der Restflüssigkeit wurde an mehreren Spritzen durch Wägung bestimmt. Hierbei wurden Restmengen zwischen ca. 50 µl und ca. 200 µl für eine Spritze mit einem Messungsvolumen von 5 ml bestimmt. Die in Sprizentoträumen verbleibende Aktivität

kann daher rechnerisch aus dem Produkt aus Volumen und zerfallskorrigierter spezifischer Aktivität der in der Spritze genutzten Flüssigkeit ermittelt werden.

Die auf diese Weise ermittelten Aktivitätsbeiträge in den Spritzen müssen in der Gesamtbilanz der Aktivität bei der Freigabe berücksichtigt werden.

5.3 Messungen für alphastrahlende Radionuklide

Messungen an flüssigen radioaktiven Stoffen mit alphastrahlenden Radionukliden konnten nicht im BS-eigenen Kontrollbereich durchgeführt werden, da hierfür nur eine Umgangsgenehmigung mit beta-/gammastrahlenden Radionukliden besteht. Aufgrund einer langjährigen Zusammenarbeit zwischen BS und der Bayer Pharma AG im Bereich Strahlenschutz ergab sich 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 Pharma AG zwecks Verwendung im vorliegenden Forschungsvorhaben freundlicherweise zur Verfügung gestellt.

Die Zielsetzung der von der Bayer Pharma 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. In die Untersuchung einbezogen wurden die folgenden Materialien:

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

Als Testlösung diente Ra-223-chlorid (1000 Bq/ml), wobei die Auftragsmenge so eingestellt wurde, dass 1000 Bq in 1 ml vorlagen.

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.

Die Ergebnisse der Versuche zeigen folgende wesentliche Ergebnisse:

Der Messwert für die α -Strahlung wuchs an (bzw. die Abschirmung wurde geringer), je stärker die Lösung in dem Material eingetrocknet war.

Die beste Detektierbarkeit der α -Strahlung wurde bei dem dünnen Papierhandtuch gefunden. Der Messwert entsprach 50 % der ursprünglich auf das Papiertuch aufgetragenen Aktivitätsmenge.

Die Messung des Untergrundes nach Entfernung des Materials zeigte bei keinem Material eine Kontamination. Das Ausleeren eines Vials auf ein saugfähiges Material führt also nicht zu einer Kontaminationsverschleppung.

Aus Versuchen und den Messergebnissen lassen sich folgende wichtige Schlussfolgerungen für die Freigabe von Flüssigkeiten mit alphastrahlenden Radionukliden ziehen:

1. 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.
2. 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.
3. 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.

Im Bericht zu Arbeitspaket 3 wird eine detaillierte Darstellung der Vorgehensweise zur Freigabe für das Radiopharmakon Xofigo[®] gegeben. Hiermit besteht nun die Möglichkeit, auch ältere Abfallgebinde mit Kontamination durch Xofigo[®] einer Freigabe zugänglich zu machen, bei denen der Anteil des langlebigen Verunreinigungsnuclids Ac-227 nicht so stark eingegrenzt werden kann wie in seit einigen wenigen Jahren verfügbaren Chargen. Gleichzeitig eröffnen diese Ergebnisse auch die Möglichkeit von Messungen an analog vorliegenden, anderen Radiopharmaka mit alphastrahlenden Radionukliden, wobei die Übertragbarkeit der Ergebnisse durch die Tatsache gebildet wird, dass die Energien relevanter alphastrahlender Radionuklide in einem vergleichsweise geringen Bereich liegen. Der anzuwendende Kompensationsfaktor hat bei der Verwendung von dünnen Papiertüchern den Wert 2.

6 Handlungsanleitungen für Freigabemessungen

Abschließend werden die aus den in Arbeitspaket 2 abgeleiteten und mit den Versuchen in Arbeitspaket 3 verifizierten Handlungsanleitungen für Freigabemessungen dargestellt. Abschnitt 6.1 geht zunächst auf den Kompensationsfaktor ein, der in Abhängigkeit vom nachzuweisenden Radionuklid und der Messgeometrie zu wählen ist. Anschließend wird in Abschnitt 6.2 die Direktmessung von beta-/gammastrahlenden Wirknukliden dargestellt. In Abschnitt 6.3 wird hieraus die verwandte Vorgehensweise abgeleitet, wenn die Aktivität des freigaberelevanten Radionuklids nicht direkt gemessen, sondern über die Aktivität eines anderen Radionuklids bestimmt wird. Abschnitt 6.4 stellt die Vorgehensweise für alphastrahlende Radionuklide dar.

6.1 Kompensationsfaktor für Freigabemessungen in nuklearmedizinischen Einrichtungen

Da das Freigabeverfahren (vgl. Abschnitt 6) so gestaltet sein soll, dass der Anwender nicht selbst eine Entscheidung über den anzuwendenden Wert der Effizienz des Kontaminationsmonitors treffen muss, sondern die Messungen so durchführen können soll, dass die Herstellerangabe für die Effizienz verwendet werden kann, muss der Unterschied zwischen der vom Hersteller angegebenen Effizienz bei optimaler Messgeometrie und der bei der Messung tatsächlich vorliegenden Messgeometrie kompensiert werden. Hierzu wurde in Abschnitt 4 bereits ein Kompensationsfaktor eingeführt, der es dem Anwender erlaubt, die aus Herstellerangaben zu entnehmenden Werte der Effizienz für Kontaktmessungen zu verwenden 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 6.2 bzw. 6.3) angegebenen Randbedingungen eingehalten werden.

Tabelle 8 gibt empfohlene Werte für den Kompensationsfaktor für Beta- und Gammastrahlung an, die mit den Ergebnissen der im Forschungsvorhaben durchgeführten Versuche und Simulationsrechnungen kompatibel sind.

Tabelle 8: Empfohlene Werte für den Kompensationsfaktor für Messungen mit Kontaminationsmonitor mit Plastikszintillator 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. 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. Für alphastrahlende Radionuklide ist nur eine Messung ohne weitere Abschirmungen möglich.

6.2 Handlungsanleitung zur Freigabe von beta-/gammastrahlenden Wirknukliden auf Grundlage von Direktmessungen

Die folgende Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die für I-125 in Abschnitt 5.2.3 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 Abfallgebinde einer Messung unterzogen

1. 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 zu diesen Verbrauchsmaterialien wird im späteren Schritt 10 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.
2. Für die weitere Vorgehensweise wird davon ausgegangen, dass die ausgewählten Abfallstücke (Messgut) getrennt vom übrigen Abfall im Abfallsammelbehälter in dem separaten Plastikbeutel vorliegen, wie in Schritt 1 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.

3. 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 und wird daher in Schritt 11 bei der Berechnung der massenbezogenen Aktivität mit berücksichtigt.
4. Mit einem Kontaminationsmonitor (vgl. die Liste von Messgeräten in AP1 dieses Vorhabens) 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.
5. 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.
6. 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, der Kontakt des Messgeräts mit dem Messgut soll jedoch vermieden werden. 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 7 in jedem Fall berücksichtigt werden.
7. Anschließend erfolgen die eigentlichen Entscheidungsmessungen. Dazu befindet sich das Messgerät ortsfest über den in Schritt 6 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.
8. Gemessen wird entweder die Zählrate (Anzahl Impulse pro Sekunde, lps), welche in eine flächenbezogene Aktivität¹ 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 8 zu berücksichtigen. Der in diesem Schritt bestimmte Wert für die flächenbezogene Aktivität wird im nächsten Schritt verwendet.

1) Die Werte der flächenbezogenen Aktivität des Messguts werden nicht für den Vergleich mit Freigabewerten herangezogen.

9. Die flächenbezogene Aktivität gemäß Schritt 8 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.
10. 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 5.2.6 zu den Restvolumina in Spritzen (oder auf Basis von vom Anwender selbst ermittelten Werten) abgeschätzt. 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.
11. Die vollständige Gesamtaktivität im Abfall setzt sich aus den beiden Werten aus Schritt 9 und Schritt 10 zusammen. Diese beiden Werte werden addiert und die Summenaktivität wird durch die gesamte Bruttomasse des Abfalls im Abfallsammelgefäß (gemäß Schritt 3) 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 den Abfallsack (oder andere Form von Umschließung), wenn dieser zur Entsorgung gelangt (s. Schritt 3). Dieser Wert entspricht der mittleren massenbezogenen Aktivität im Abfall.
12. 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.

6.3 Handlungsanleitung zur Freigabe von beta-/gammastrahlenden Radionukliden bei rechnerischer Aktivitätsbestimmung des freigaberelevanten Radionuklids auf Grundlage von Messungen

Diese Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die für Lu-177m in Abschnitt 5.2.4 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 6.2 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 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. Überschreitet die Summenformel nicht den Wert 1, so kann die gesamte Abfallmenge im Abfallsammelgefäß freigegeben werden.

6.4 Handlungsanleitung zur Freigabe für alphastrahlende Radionuklide

Diese Handlungsanleitung basiert auf den Messungen, die gemäß Darstellung in Abschnitt 5.3 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 ausgetragene Kontamination auf Abfallstücken nur eine untergeordnete Rolle spielt. Falls es sich dagegen um eine Darreichungsform handelt, bei welcher die Menge an Restflüssigkeiten sehr gering ist, ist der in Abschnitt 6.2 gegebenen Darstellung zu folgen.

Die Situation, dass die Aktivitätsmenge zu einem wesentlichen Teil in Form von Restflüssigkeit im Vial vorliegt, 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 als Abfall verworfen wird. Im Beispiel des Radiopharmakons Xofigo[®] mit den beiden Verunreinigungsnucliden Ac-227 und Th-227 wird der messtechnische Nachweis über das alphastrahlende Th-227 geführt, das aber erst radioaktives Gleichgewicht mit dem Mutternuclid Ac-227 erreichen muss. Sofern die Aktivität des Verunreinigungsnuclids aus der Aktivität eines anderen Radionuklids abgeleitet wird, ist zuvor sicherzustellen, dass der Abfall ausreichend lange abgeklungen ist, so dass der betreffende Nachweis möglich ist.

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 mit dem Kompensationsfaktor 2 (Tabelle 8) multipliziert wird (vgl. Ergebnis der in Abschnitt 5.3 beschriebenen Experimenten). 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).
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.

6.5 Fazit

Die hier vorgestellten Handlungsanleitungen erlauben die Durchführung von Freimessungen im Sinne von § 31ff. StrlSchV für eine Anzahl von Radionukliden (vgl. u. a. Tabelle 1), für die bisher einer Freigabe nicht oder nicht routinemäßig in Betracht gezogen wurde. Diese Handlungsanleitungen stehen dabei in Einklang mit den einschlägigen Anforderungen der Anl. 8 StrlSchV sowie den durch DIN 25457 definierten Anforderungen. Sie stimmen ferner mit den in der SSK-Empfehlung „Therapeutische Verfahren in der Nuklearmedizin“ (verabschiedet im September 2022) enthaltenen Empfehlungen hinsichtlich der Freigabe von radioaktiven Reststoffen aus der Nuklearmedizin überein. Die Handlungsanleitungen ermöglichen die Durchführung von Freigabeverfahren für solche Radionuklide, für die bislang eine Freigabe nicht in Erwägung gezogen wurde und die somit des Öfteren aus dem Angebot insbesondere kleinerer nuklearmedizinischer Einrichtungen allein aufgrund der sehr hohen Kosten der Entsorgung radioaktiver Abfälle bei einer Landessammelstelle ausgeschlossen waren.

Herausgeber:

Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und
Geologie (LfULG)

Pillnitzer Platz 3, 01326 Dresden

Telefon: + 49 351 2612-0; E- Mail: lfulg@smekul.sachsen.de

www.lfulg.sachsen.de

Autoren:

Brenk Systemplanung GmbH

Rebekka Gehr

Dr. Stefan Thierfeldt

Strahlenschutz, Kerntechnik und Stilllegung/ Radiation

Protection, Nuclear Technology and Decommissioning

Heider-Hof-Weg 23, 52080 Aachen (Germany)

Telefon +49-(0)2405-4651-13; E-Mail: s.thierfeldt@brenk.com

Redaktion:

Dipl.-Phys. Hadi Stephan Alborzi

Referat 53 | Strahlenschutz – Industrie, Medizin, Forschung |

Department 53 | Radiation Protection – Industry, Medicine,

Research

Söbrigener Straße 3a | 01326 Dresden

Postanschrift: Pillnitzer Platz 3 | 01326 Dresden

Telefon: +49 351 2612 5302

E-Mail: Hadi.Alborzi@smekul.sachsen.de

Fotos:

Brenk Systemplanung GmbH

Auflage:

1. Auflage

Redaktionsschluss:

3.11.2022

ISSN:

1867-2868

Hinweis:

Die Broschüre steht nicht als Printmedium zur Verfügung, kann
aber als PDF-Datei unter <https://publikationen.sachsen.de>
heruntergeladen werden.

Verteilerhinweis

Diese Informationsschrift wird von der Sächsischen Staatsregie-
rung im Rahmen ihrer verfassungsmäßigen Verpflichtung zur In-
formation der Öffentlichkeit herausgegeben. Sie darf weder von
Parteien noch von deren Kandidaten oder Helfern zum Zwecke
der Wahlwerbung verwendet werden. Dies gilt für alle Wahlen.
Missbräuchlich ist insbesondere die Verteilung auf Wahlveran-
staltungen, an Informationsständen der Parteien sowie das Ein-
legen, Aufdrucken oder Aufkleben parteipolitischer Informatio-
nen oder Werbemittel. Untersagt ist auch die Weitergabe an
Dritte zur Verwendung bei der Wahlwerbung.

*Täglich für
ein gutes Leben.*

www.lfulg.sachsen.de