



---

**Forschungszentrum Karlsruhe**  
in der Helmholtz-Gemeinschaft

---

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 7261

# **Kompetenzerhalt im Strahlenschutz**

**M. Urban, S. Ugi**  
Hauptabteilung Sicherheit

Oktober 2006



**Forschungszentrum Karlsruhe**

in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte

**FZKA 7261**

**Kompetenzerhalt im Strahlenschutz**

**M. Urban, S. Ugi**

**Hauptabteilung Sicherheit**

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2006

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft  
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

urn:nbn:de:0005-072617

## Zusammenfassung

Strahlenschutz hat im Forschungszentrum Karlsruhe eine lange wissenschaftliche und anwendungsorientierte Tradition. Änderungen in den Forschungsschwerpunkten haben auch Auswirkungen auf den Themenschwerpunkt Strahlenschutz mit sich gebracht. Altersbedingte Personalfuktuation lässt befürchten, dass in einiger Zeit die wissenschaftliche und praktische Kompetenz verloren geht. Aus diesem Grund hat die Hauptabteilung Sicherheit in den letzten Jahren damit begonnen, über wissenschaftliche Kompetenzerhaltungsprogramme Nachwuchswissenschaftlerinnen und –wissenschaftler, Doktoranden und Studenten an das Aufgabengebiet heranzuführen und aktiv Wissen zu übertragen. Die Ausbildung von Strahlenschutzingenieuren in Zusammenarbeit mit der Berufsakademie rundet diese Bemühungen des Forschungszentrums ab. Im vorliegenden Bericht werden die einzelnen Arbeitsschwerpunkte und die bisher erzielten Ergebnisse zusammengefasst dargestellt.

## Research in Radiation Protection

### Abstract

Radiation Protection has a long scientific tradition and big experience in radiation protection practice. Changes in the focus of the research program of the Forschungszentrum have influenced our activities in the field of radiation protection. Since older staff members experienced in radiation protection already have or are going to retire in the near future, it is necessary to run scientific education programmes in the field of radiation protection for post docs and students. The Central Safety Department started several programmes in the last years. In this report the results obtained so far are presented.

## INHALTSVERZEICHNIS

1	Kompetenzerhalt im Strahlenschutz.....	1
2	Bestimmung von schwer nachweisbaren Radionukliden in unterschiedlichen Materialien im low(est)-level-Bereich .....	2
2.1	Radiochemische Analytik.....	2
2.1.1	Bestimmung von schwer nachweisbaren Radionukliden in unterschiedlichen Materialien im low(est)-level Bereich - Trennverfahren .....	2
2.1.2	Entwicklung einer Methode zur Bestimmung von Uran in Boden, Gestein und Klärschlamm in pulverförmigen Proben mittels energiedispersiver Röntgenfluoreszenz.....	8
2.2	Physikalische Messverfahren .....	10
2.2.1	Optimierung einer aktiven Abschirmung für die Gammaskopimetrie .....	10
2.2.2	Aufbau eines mobilen Detektors zur Messung des Myonenflusses .....	12
2.2.3	Validation and automation of a gamma spectrometric analysis method for natural occurring radionuclides in different materials (NORM) .....	13
3	Dosimetrie in gemischten Neutronen/Photonen Strahlungsfeldern.....	17
3.1	Kalibrierung von CaF <sub>2</sub> :Tm-Detektoren mit Energiekompensationsfilter im PTB-Referenzfeld für thermische Neutronen.....	17
3.2	Optimierung der Energiekompensationsfilter und Verbesserung des Messverfahrens für TLD-300.....	18
4	Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Körper: In-Vivo-Diagnostik, Biokinetik, Dosimetrie	22
4.1	In-Vivo-Diagnostik.....	22
4.1.1	Entwicklung eines Verfahrens zur numerischen Kalibrierung von Teilkörperzählern .....	22
4.1.2	Numerische Effizienzkalibrierung bei In-vivo-Messverfahren mittels an den Probanden angepassten Voxelmodellen .....	24
4.1.3	Lokale Deposition von Am-241 in hautnahen Gewebereichen.....	29
4.2	Biokinetik, Dosimetrie .....	31
4.2.1	Entwicklung biokinetischer Modelle zur Beschreibung der Wirkung von DTPA in Hinblick auf die Diagnostik und Therapie bei Inkorporationen von Plutonium und anderen Transuranen .....	31
4.2.2	Untersuchung der inter-individuellen Variation von biokinetischen Modellen .....	37
4.2.3	Spätfolgen bei US Ziffernblattmalern nach der Aufnahme von Radium .....	42
5	Natürliche Strahlenexposition, Strahlenexposition bei „Arbeiten“ .....	47
5.1	Einführung eines Qualitätsmanagementsystems für das Radon-Messlabor des Forschungszentrums Karlsruhe.....	47
5.2	Radonerhebungsmessungen in Wasserwerken in Baden-Württemberg .....	49
6	Literatur .....	52





---

# 1 Kompetenzerhalt im Strahlenschutz

Strahlenschutz hat in Karlsruhe eine lange wissenschaftliche Tradition. Politische Entscheidungen der letzten Jahre und ein falsches Grundverständnis von den eigentlichen Aufgaben des Strahlenschutzes haben mit dazu beigetragen, dass das Interesse an diesem Fachgebiet stark gesunken ist und heute ein akuter Mangel an qualifiziertem Strahlenschutzpersonal besteht. Das war nicht immer so. Das Forschungszentrum Karlsruhe hat in der Vergangenheit wesentlich zum heutigen hohen Wissensstand dieser Fachrichtung beigetragen. Wesentlich war, dass es gelungen ist, das Erarbeiten von wissenschaftlichen Grundlagen an der Universität und dem heutigen Forschungszentrum Karlsruhe, das Übertragen der gewonnenen Erkenntnisse in die Praxis und die Rückkopplung praktischer Erfahrung in die wissenschaftliche Arbeit mit einer qualifizierten Ausbildung zu kombinieren.

In Zusammenarbeit mit der Universität Karlsruhe und der Berufsakademie Karlsruhe und mit Unterstützung des Umweltministeriums des Landes Baden-Württemberg und des Bundesministeriums für Bildung und Forschung werden in der Hauptabteilung Sicherheit des Forschungszentrums mehrere Programme zum Kompetenzerhalt im Strahlenschutz durchgeführt. Nachwuchswissenschaftlerinnen und –wissenschaftler arbeiten unter Anleitung erfahrener Kollegen und unter Einbindung von Studenten, Diplomanden und Doktoranden auf den Gebieten:

- Kernstrahlenmesstechnik und Spektrometrie,
- Radiochemie,
- externe Dosimetrie,
- Biokinetik sowie In-Vivo-Diagnostik radioaktiver Stoffe im Körper und interne Dosimetrie sowie
- natürliche Strahlenexposition am Arbeitsplatz, in Wohnungen, in der Umwelt.

Eine aktive Beteiligung an der dualen Ausbildung von Strahlenschutzingenieuren an der Berufsakademie Karlsruhe runden die Maßnahmen zum Kompetenzerhalt ab.

Der vorliegende Bericht gibt eine Übersicht über die derzeit in den einzelnen Themenschwerpunkten durchgeführten Arbeiten einschließlich der Abschlussarbeiten unserer Studenten.

---

## **2 Bestimmung von schwer nachweisbaren Radionukliden in unterschiedlichen Materialien im low(est)-level-Bereich**

### **2.1 Radiochemische Analytik**

#### **2.1.1 Bestimmung von schwer nachweisbaren Radionukliden in unterschiedlichen Materialien im low(est)-level Bereich - Trennverfahren**

A. Bohnstedt, M. Pimpl

Im Rahmen eines Forschungsvorhaben werden Analysenmethoden zum Nachweis von Radionukliden in unterschiedlichen Matrices unter Berücksichtigung von Zeit- und Kostenfaktoren erstellt.

In der Chemischen Analytik der Hauptabteilung Sicherheit/Überwachung und Messtechnik müssen für die Emissions-/Immissions- und Arbeitsplatzüberwachung reine Alpha- und Beta-Strahler ohne Gamma-Komponente mit aufwändigen nuklidspezifischen Verfahren bestimmt werden. Die dazu verwendeten chemischen Methoden der Nass- und Trockenveraschung zum Matrixaufschluss und der Flüssig-Flüssig-Extraktion, Mitfällung und Ionenaustausch-Chromatographie zur Abtrennung von Matrix- und Spurenelementen sowie störender Radionuklide, zeichnen sich durch große Variabilität aus. Sie sind universell für Probenmengen von 0,1 bis 100 Gramm einsetzbar, trennen störende Matrixelemente (z. B. Ca, Ba, Fe) gut ab und der radiochemische Trennungsgang ist auf die gängigen nachzuweisenden bzw. abzutrennenden Nuklide eingestellt. Allerdings ist ein relativ großer Zeitaufwand und Einsatz von Chemikalien nötig und die Handhabung der chemischen Verfahren ist nicht trivial.

Im Zusammenhang mit der Stilllegung und dem Rückbau kerntechnischer Anlagen müssen zahlreiche Proben sowohl wiederholt von gleichen, aber auch von unterschiedlichen Materialien, entnommen und auf ihren Gehalt an radioaktiven Stoffen untersucht werden. Wenn durch diese Messungen nachgewiesen wird, dass der Gehalt an radioaktiven Stoffen unter dem behördlich vorgegebenen Grenzwert (Strahlenschutzverordnung vom 20.07.2001, Anlage III, Tab.1, Spalte 5 und 7) liegt, können die Materialien freigegeben werden.

Für große Stückzahlen an Proben gleicher Matrixzusammensetzung besteht der Bedarf an kostengünstigen und schnellen Analysenverfahren. Auf Grund der unterschiedlichen Grenzwerte für die Freigabeanalytik einerseits (Tabelle 1) und andererseits die Emissions- und Immissionsüberwachung (Tabelle 2) ergibt sich für die Freigabeanalytik die Möglichkeit die zu untersuchende Einzelprobenmenge auf wenige Gramm zu reduzieren. Dadurch können auch andere Matrixaufschlussverfahren, z. B. alternativ zum Nass- und Trockenaufschluss die Mikrowellen-Aufschluss-Technik, und Trennmethode für kleine Probenmengen, z. B. Extraktionschromatographie, getestet werden.

Probe-Materialien	zu bestimmende Radionuklide	geforderte Nachweisgrenze (StrlSchV, Anlage III, Tab. 1)	Mindestmenge Probenmatrix für Analyse
Bauschutt Beton Stahl Kunststoffe Holz Öle	H-3, C-14, Sr-89/90 Fe-55/59, Ni-63 Th-, U-, Pu-, Am/Cm- Isotope	Sr-90: 2,0 [Bq/g] Fe-55/59, Ni-63: 200 [Bq/g] Th-, U-, Pu-, Am/Cm-Isotope: 0,04 [Bq/g]	Sr-90: 0,1 - 0,3 g Fe-55/59: 0,01 g Ni-63: 0,01 g Aktiniden: 2,0 g

Tabelle 1: Grenzwerte Freigabeanalytik

Probe-Materialien	zu bestimmende Radionuklide	geforderte Nachweisgrenze nach REI 1993 (*1997)	Mindestmenge Probenmatrix für Analyse
Filter (Glasfaser, Cellulose)	H-3, C-14, Sr-89/90 Th-, U-, Pu-, Am/Cm- Isotope	Sr-90: 0,002 [Bq/m <sup>3</sup> ] $\alpha$ -gesamt*: 0,0000037 [Bq/m <sup>3</sup> ]	Sr-90: 100 - 300 m <sup>3</sup> Umgebungsluft -> bis zu 1 g Filterbelegung $\alpha$ -gesamt: 20.000 - 30.000 m <sup>3</sup> Umgebungsluft -> bis zu 1 g Filterbelegung
Wasser (Grund-, Oberflächen-, Niederschlags-, Abwasser)		H-3: 10,0 [Bq/l]	H-3: 2 - 4 ml
Boden und Gestein Sediment		Sr-90*: 0,00007 [Bq/g]	Sr-90: 200 g
Pflanzen Lebensmittel (tierisch und pflanzlich)		Sr-90: 0,00002 [Bq/g]	Sr-90: 20 – 50 g Asche

Tabelle 2: Grenzwerte Emissions- und Immissions-Überwachung

Ein weiterer Aspekt der Freigabe-Messungen ist die große Anzahl an gleichartigen Proben wodurch 'spezifische' Trennverfahren angewendet werden können. Dabei werden diese Verfahren auf bestimmte Matrices und nachzuweisende Radionuklide eingestellt und dadurch eine Verkürzung und Vereinfachung des chemischen Trennungsganges erzielt. Diese Vorgehensweise eignet sich aber nur für eine größere Stückzahl an gleichen Proben, da das Anpassen der Methoden arbeitsaufwändig ist.

Nachfolgend wird die Entwicklung eines Trennungsganges zum Nachweis der Elemente Americium, Plutonium, Uran und Thorium in Bauschuttproben, die aus frei zu messenden Gebäuden kommen, dargestellt. Durch entsprechende Anpassung kann dieser auch für Chemieschlammproben, die bei der betriebseigenen Abwasserbehandlung anfallen, verwendet werden.

---

## ***Trennungsgang zum Nachweis von Am, Pu, U und Th in Bauschutt- und Chemieschlammproben***

Für den Nachweis von Americium, Thorium, Uran und Plutonium in Bauschuttproben wurde ein Trennungsgang erarbeitet, bei dem das Auflösen der Probenmatrix mittels Mikrowellen-Aufschluss und die Nuklidabtrennung durch Extraktionschromatographie erfolgt. Anschließend wurde das Verfahren für Chemieschlammproben noch weiter modifiziert.

### **Mikrowellen-Aufschlussverfahren**

#### ***Mikrowellen-Gerät***

Das verwendete Mikrowellen-Gerät ist eine mikroPREP 1500 der Firma MWS Vertriebs GmbH, die mit einem MR-10 HT Rotorarbeitsplatz HTV-75 versehen ist. Da einer der 10 HTV Behälter (V=100 ml; pmax=90 bar) mit der automatischen Temperatur-Kontrolleinheit ATC CE-400 bestückt wird, können in den anderen Gefäßen bis zu 9 gleiche Proben zur selben Zeit aufgeschlossen werden. Außerdem verfügt das System durch eine so genannte Q/P-Sensorik über eine Druckkontrolle, wodurch die Dichtigkeit aller Behälter gleichzeitig überwacht wird.

#### ***Aufschlussverfahren***

Reale Bauschuttproben aus dem Rückbau des Mehrzweck-Forschungsreaktor des Forschungszentrum Karlsruhe wurden mit verschiedenen Mikrowellen-Aufschluss-Vorschriften für Zement, Boden, Sand und Sandstein [Ale90, Roi95, Mar98, Mih99] bearbeitet. Da keine der Vorschriften sofort zu dem gewünschten Ergebnis einer klaren Aufschlusslösung führte, wurden diese durch weitere Säurezugaben bzw. Zeit- und Temperaturveränderungen [Kin88] schrittweise modifiziert und getestet bis eine gelöste Probe vorlag. Das weiter unten beschriebene Verfahren wurde sowohl für mehrere Bauschuttproben derselben Probenentnahmestelle als auch für räumlich verschiedene Entnahmestelle der Bauschuttproben erfolgreich angewendet. Zum Nachweis wurden unterschiedliche Proben mit Pu- und Am-Tracer versetzt und sowohl mit dem herkömmlichen nasschemischen als auch mit dem neuen Mikrowellen-Verfahren aufgeschlossen und anschließend Pu und Am mit den in der Gruppe Chemischen Analytik etablierten Trenn- und Messverfahren nachgewiesen. Ein Vergleich der Ausbeuteergebnisse zeigt eine gute Übereinstimmung für beide Aufschlussverfahren:

1. nasschemischer Aufschluss: Pu 75 %-88 % und Am 21 %-30 %;
2. Mikrowellen-Aufschluss: Pu 90 %-97 % und Am 20 %-25 %:

Aufgrund der unterschiedlichen Matrixzusammensetzung bei Bauschutt und Chemieschlamm musste für die Schlammproben das Mikrowellenaufschlussverfahren erneut angepasst werden. Hierzu wurde sowohl die Säurezugabe als auch die Mikrowellenleistung variiert bis ebenfalls ein zufriedenstellendes Ergebnis erreicht war.

---

### Anleitung Mikrowellenaufschluss Bauschutt

Probe: 1 g Einwaage

#### 1. Schritt

Chemikalien:	15 ml HNO <sub>3</sub> (65 %)		
	6 ml HCl (32 %)		
	5 ml HF (48 %)		
Mikrowellenleistung:	1000 W	10 min	160 °C
	1000 W	7 min	210 °C
	700 W	30 min	210 °C

#### 2. Schritt

Chemikalien:	15 ml H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> (gesättigte Lösung)		
Mikrowellenleistung:	1000 W	10 min	160 °C
	700 W	15 min	160 °C

### Anleitung Mikrowellenaufschluss Chemieschlamm

Probe: 1 g Einwaage

#### 1. Schritt

Chemikalien:	10 ml HNO <sub>3</sub> (65 %)		
	1 ml H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (10%)		Gasentwicklung abwarten
	5ml HNO <sub>3</sub> (65%)		
	6 ml HCl (32 %)		
	5 ml HF (48 %)		
Mikrowellenleistung:	800 W	15 min	160 °C
	1000 W	7 min	210 °C
	700 W	40 min	210 °C

#### 2. Schritt

Chemikalien:	7 ml H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> (gesättigte Lösung)		
Mikrowellenleistung:	600 W	10 min	160 °C
	800 W	15 min	160 °C

---

## **Am, Pu, Th und U-Trennungsgang**

### **Extraktionschromatographie**

Bei der Extraktionschromatographie ist die Selektivität eines organischen Extraktionsmittels der Flüssig-Flüssig-Extraktion mit der Schnelligkeit der Chromatographie, d.h. viele Wechselschritte zwischen stationärer und mobiler Phase, kombiniert. Die für unterschiedliche Aufgabenstellungen käuflich zu erwerbenden Extraktionschromatographie-Materialien (Eichrom Industries Inc., Darien/Illinois – USA) enthalten ein der Aufgabenstellung angepasstes selektives, organisches Extraktionsmittel, das auf ein inertes Trägermaterial aufgetragen ist. Dort bleibt es auf Grund von Adsorptions- und Kapillareffekten haften und bildet die stationäre Phase. Die mobile Phase ist die wässrige, häufig saure Probenlösung, die die zu extrahierenden Ionen oder Verbindungen enthält. Die Trennung verschiedener Metallionen und Metallionenverbindungen ist auf Grund der ungleichen Verteilung der verschiedenartigen Spezies in der stationären, organischen Phase und der mobilen, wässrigen Phase möglich.

### **Trennungsgangentwicklung an Bauschuttproben**

Die kommerziell erhältlichen Extraktionschromatographie-Säulen (z. B. TRU-Resin, UTEVA-Resin, TEVA-Resin u.a.) sind nicht spezifisch für die Abtrennung eines Elements (z. B. U, Th, Am, Pu, Np, Tc), sondern können durch die Variation der Säuren (meistens Salpetersäure oder Salzsäure) und der Säurestärke bzw. durch Nutzung eines Aussalzeffekts (z. B.  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) und wässriger Komplexbildner (z. B. Oxalsäure) unterschiedlich angewendet werden [Hor93, Hor95, Max97]. Auch ein und dasselbe Element kann durch diese Variabilität auf verschiedenen Säulen (z. B. Uran auf TRU und UTEVA Resin) abgetrennt werden. Dadurch ergibt sich die Möglichkeit einen Trennungsgang sowohl auf die Probenmatrix als auch auf die nachzuweisenden Elemente abzustimmen [Dul01, Pil00]. Nachfolgend wird ein Trennungsgang (Abbildung 1) vorgestellt, bei dem erst die Hauptmenge der chemisch gelösten Probenmatrix entfernt wird und anschließend die nachzuweisenden Radionuklide voneinander getrennt werden.

Zuerst wurde der Trennungsgang in einzelnen Teilschritten und mit Tracerlösungen, die nur jeweils ein Nuklid enthielten, getestet. Nach der Abtrennung wurden die Messpräparate durch Elektroplattierung hergestellt und in einem  $\alpha$ -Spektrometer gemessen (Ausbeute: Th: 34 - 39 %; U: 70 - 92 %; Am: 75 - 94 %; Pu 75 - 85 %). Anschließend wurde der Gesamt-trennungsgang mit Mischtracerlösungen von vier Nukliden ausprobiert (Ausbeute: Th: 35 – 52 %; U: 70 – 101 %; Am: 80 – 95 %; Pu 78 – 89 %).

Dieser Trennungsgang wurde dann auf Bauschuttproben, denen Am-, U-, Th- und Pu-Tracer zugesetzt worden waren, angewendet. Vorher wurde das Probenmaterial sowohl durch nasschemische als auch durch Mikrowellen-Aufschlüsse in Lösung gebracht. Die dabei erzielten Ausbeuten (1. nasschemischer Aufschluss und Trennungsgang Ausbeute: Th: 35 – 48 %; U: 71 - 107 %; Am: 16 - 25 %; Pu: 77 - 85 % und 2. Mikrowellen-Aufschluss und Trennungsgang Ausbeute: Th: 61 - 89 %; U: 37 - 63 %, Am: 8 - 25 %; Pu: 77 - 94 %) sind zwar mit den vorherigen Ergebnissen vergleichbar, aber es konnte keine saubere Trennung der Elemente erreicht werden d. h. bei der Messung im Alpha-Spektrometer entstanden Spektren, die mehr als einen Peak enthielten. Dieses führt dann bei Freimess-Proben, die Kontaminationen aufweisen, zu Problemen bei der Auswertung der Spektren, da pro Element neben

dem Peak des Tracernuklids auch noch ein bis mehrere Peaks unterschiedlicher Energien für die nachzuweisenden Nuklide auftreten.

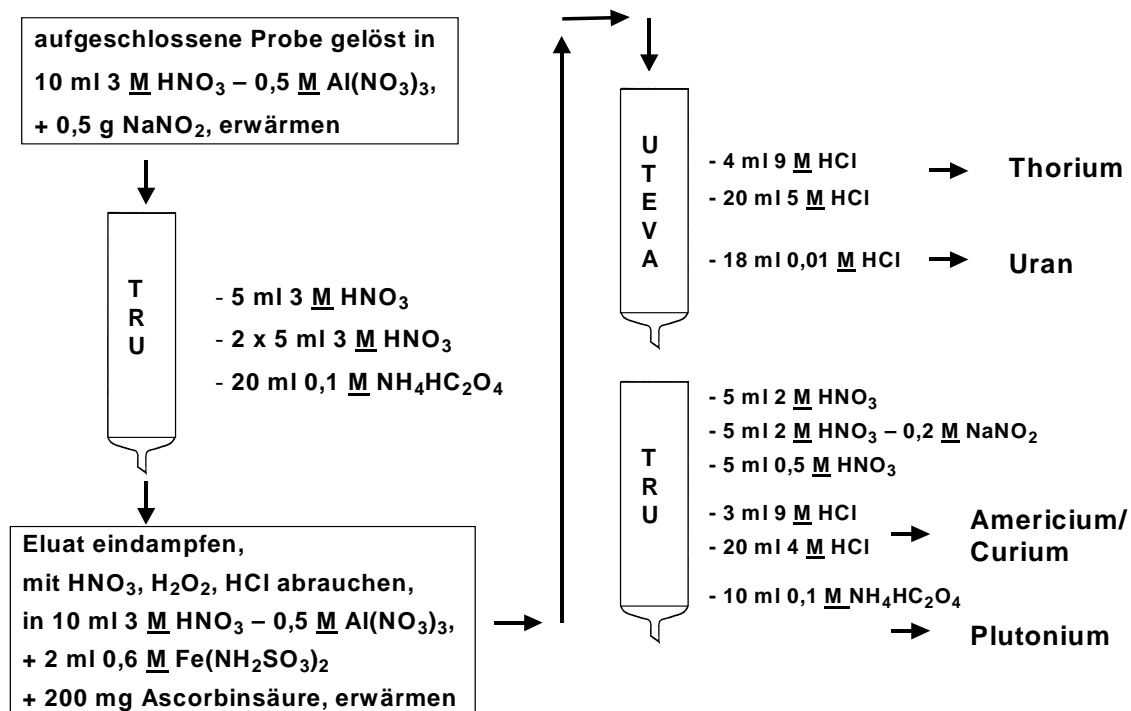


Abbildung 1: Trennungsgang für Th, U, Am und Pu

Der Effekt der Verschleppung von Elementen in unterschiedliche Trennfractionen hängt von der Menge an inaktiver Matrix in den Bauschuttproben ab. Da zur Einhaltung der Grenzwerte für die Freigabe (Tabelle 1) eine Mindestprobenmenge bei der Analyse Voraussetzung ist, wurde versucht, eine bessere Abtrennung der Matrix durch Verdopplung des ersten Abtrennschritts (1. TRU-Säule in Abbildung 1) zu erzielen. Das bedeutete anstelle von 0,7 g TRU-Resin 1,4 g Resinmaterial einzusetzen. Aber auch dieses konnte eine Verschleppung der Elemente nicht ganz verhindern.

Als nächste Möglichkeit wurde eine klassische Flüssig-Flüssig-Extraktion mit TOPO (Tri-n-octylphosphinoxid) als organisches Extraktionsmittel zur Abtrennung des Hauptanteils an Matrix getestet. Hierbei gibt es verschiedene Wege der Rückextraktion aus der organischen Phase, z. B. mit Ascorbinsäure, Ammoniumfluorid etc. Diese erwiesen sich jedoch alle als störend im Extraktionschromatographie-Trennungsgang und es konnte auch bei dieser Methode keine vernünftige Trennung der Elemente erreicht werden. Ein zusätzlicher Fällungsschritt im Gesamtverfahren, um die Flüssig-Flüssig-Extraktion mit der Extraktionschromatographie kombinieren zu können, bedeutet aber auch entsprechend mehr Zeit und Materialkosten.

Daher wurde erneut die Matrixabtrennung mittels noch größerer TRU-Resin-Säulen (2 g) untersucht und es konnte für eine Tracer-Mischlösung Ausbeuten von 56 % für Thorium und

---

über 90 % für Americium, Uran und Plutonium erzielt werden. Auf Grund dieser zufriedenstellenden Werte wurde das neue Verfahren auch auf Chemieschlammproben, für die Uran- und Plutoniumaktivitäten zu bestimmen waren, angewendet.

### **Chemieschlammproben**

Ein Gramm des getrockneten Chemieschlammes wurde mittels Mikrowellenaufschluss (Anleitung s. o.) in Lösung gebracht und dann der Hauptteil der Matrix auf einer 2 g TRU-Säule entfernt. Dazu mussten bei diesem Schritt des Extraktionschromatographie-Trennungsgangs (siehe Abbildung 1) die Säuremengen entsprechend erhöht werden – 10 ml anstelle der 5 ml Portionen 3 M HNO<sub>3</sub> und zum Eluieren 55 ml 0,1 M NH<sub>4</sub>HC<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Anschließend wurde entsprechend der Vorschrift weiter gearbeitet. Sowohl für Uran als auch für Plutonium konnten gute Ergebnisse erreicht werden ( Ausbeute U: 57 – 89 %, Pu: 47 – 86 %).

## 2.1.2 Entwicklung einer Methode zur Bestimmung von Uran in Boden, Gestein und Klärschlamm in pulverförmigen Proben mittels energiedispersiver Röntgenfluoreszenz

S. Tachlinski, M. Pimpl

Um in Umweltproben eine Erhöhung Urangehalts natürlichen Ursprungs oder eine Erhöhung dieses Gehaltes z.B. durch Kontamination oder Immission zu prüfen, werden davon repräsentative Proben genommen und analysiert. Aufgabe dieser Diplomarbeit (S. Tachlinski, Berufsakademie Karlsruhe) war die Erstellung von Messmethoden, die eine möglichst empfindliche Uranbestimmung in Boden-, Gestein- und Klärschlammproben mittels energiedispersiver Röntgenfluoreszenz (EDRFA) ermöglichen. Die zu untersuchende Probe wird dabei durch Bestrahlung mit Röntgenstrahlen zur Emission von Fluoreszenzstrahlung angeregt. Anhand der Fluoreszenzstrahlung ist eine selektive Elementbestimmung der Elemente von Na bis U in einem Analysevorgang nebeneinander möglich (Abbildung 2).

Vorteile der Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) gegenüber anderen Analysemethoden sind die vielen gleichzeitig damit erfassbaren Elemente und deren Gehaltsbereiche, hohe Präzision, geringer Zeit- und Arbeitsaufwand, sowie die zerstörungsfreie Analyse einer Probe. Sie zeichnet sich durch einen geringen Arbeitsaufwand in der Routine aus, ist einfach zu bedienen, erfordert für Pulverproben keine aufwendige Probenvorbereitung und ist, nach einmaliger Kalibrierung, leicht rekali­brierbar. Sie ist sehr vielseitig, erlaubt die Analyse von verschiedenen Probenarten und ermöglicht mit ihrer kurzen Messzeit von 15 Minuten einen hohen Probendurchsatz.

Nachteil der RFA ist eine starke Abhängigkeit von der Probenmatrix. Weiteren Einfluss auf das Messergebnis haben die Korngröße und deren Verteilung, die Feuchtigkeit der Probe und Oberflächenrauigkeit. Bei der Analyse von Uran ist vor allem Rubidium ein besonders zu beachtendes Stö­relement, welches bei der Kalibrierung bis zu einem Gehalt von 100 ppm berücksichtigt wurde.



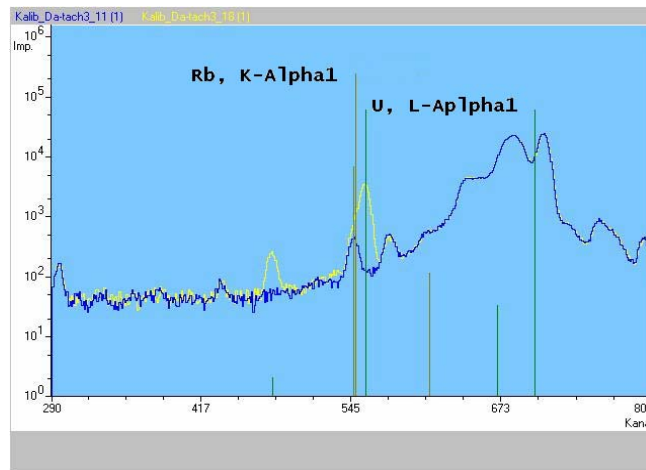


Abbildung 2: Spektrum von Uran in Boden (Blau: Bodenprobe mit 4 ppm Uran; Gelb: Bodenprobe mit 348,6 ppm Uran)

Die erstellten Messmethoden eignen sich zur Bestimmung des Urangehalts in pulverförmigen Proben aus Boden, Gestein, Seesand und Proben ähnlicher Matrix (z. B. Klärschlamm, Schlacke). Zu analysierende Proben werden, je nach Korngröße des Aufgabeguts, mit einem Backenbrecher oder einer Schwingmühle pulverisiert und in Messbehälter (sog. Messküvetten) überführt. Der qualitative Nachweis von Uran ist ab einer Konzentration von 1 µg Uran pro Gramm Probenmaterial möglich. Die Nachweisgrenze bei der quantitativen Bestimmung von Uran in Boden, Gestein und Seesand liegt bei etwa 12 µg Uran pro Gramm Probenmaterial. In Proben, deren chemische Zusammensetzung den eben genannten Matrices sehr ähnlich ist (z. B. Klärschlamm), liegt die Nachweisgrenze für die quantitative Uranbestimmung bei etwa 20 µg Uran pro Gramm Probenmaterial. Die Unsicherheit der gemessenen Urankonzentration nimmt mit steigender Urankonzentration in der Probe ab, für mehr als 50 µg Uran pro Gramm Probenmaterial beträgt sie bei der matrixspezifischen Analyse etwa 5 %.

Die erstellten Methoden zur Bestimmung des Urangehalts in pulverförmigen Proben von Boden, Gestein, Seesand und Proben ähnlicher Matrix (z. B. Klärschlamm, Schlacke) können ergänzend zu anderen Messverfahren, wie z. B. der Radiochemie oder der Gamma-Spektrometrie angewendet werden. Wenn die Probenmatrix mit der RFA bestimmt wurde, kann damit der Analysengang optimiert und anhand der Abschätzung der Urankonzentration kann die Einwaage den geforderten Nachweisgrenzen entsprechend angepasst werden. Bei der Gamma-Spektrometrie ist es möglich, anhand der Matrixzusammensetzung die mathematische Effizienzkalibrierung zu vervollständigen. Eine weitere mögliche Anwendung der RFA wäre die Selektion von Proben mit erhöhter Urankonzentration aus einer Reihe von Proben. Da zur Analyse der Probe mit der RFA nur eine sehr kurze Messzeit nötig ist, kann durch die Reduzierung der Probenzahl für ein weiteres, aufwändigeres Verfahren der Arbeitsaufwand erheblich reduziert werden.

---

## 2.2 Physikalische Messverfahren

### 2.2.1 Optimierung einer aktiven Abschirmung für die Gammaskpektrometrie

S. Ledermann (Fachhochschule Coburg), Chr. Wilhelm

Die Low-Level-Gammaskpektrometrie ist ein Teilgebiet der Gammaskpektrometrie, die sich mit der Messung von sehr geringen Probenaktivitäten beschäftigt. Das praktische Anwendungsgebiet liegt in der routinemäßigen Messung der Spuren gammastrahlender Radionuklide in Lebensmitteln, Umweltproben, Abwässern und im menschlichen Körper zum Zwecke des Strahlenschutzes.

Als Instrument hierfür dient das Germanium-Gammaskpektrometer, welches ein exzellentes Energieauflösungsvermögen und eine gute Nachweiswahrscheinlichkeit für Photonen aufweist und zudem noch relativ einfach zu handhaben ist. Trotz des hohen Auflösungsvermögens, gibt es immer noch relevante Signale, die kaum noch vom Untergrund zu unterscheiden sind. Im Rahmen einer Diplomarbeit (S. Ledermann, FH Coburg) war ein aktives Abschirmverfahren zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses zu realisieren.

Im aufgenommenen Spektrum werden die Nutzsignale von anderen Signalen überlagert, die nicht aus der Probe selbst stammen, sondern aus Zerfallsprozessen in der Umgebung oder aus kosmischen Ereignissen, wie in der nachfolgenden Abbildung dargestellt ist.

Zu den kosmischen Ereignissen zählen zum einen Vorgänge, die in der Sonne stattfinden und zum anderen Supernova-Explosionen, Aktivitäten in Galaxienkernen und Neutronensterne. Beim Eintritt von Teilchen (die aus diesen kosmischen Ereignissen resultieren) in die Erdatmosphäre entstehen daraus vornehmlich Myonen (die mit Elektronen verwandt sind) und Neutronen. Aufgrund der sehr hohen Energien können diese Myonen und Neutronen eine Reihe von Folgereaktionen nach sich ziehen, die sich dann auch auf das betrachtete Gammaskpektrum auswirken.

Im Spektrum sieht man nicht nur die Aktivität aus der untersuchten Probe, sondern auch z. B. Signale, die in einer Kette von Ereignissen auf eine Supernovaexplosion zurückzuführen ist, die sich vor Millionen von Jahren am anderen Ende der Milchstraße ereignet hat. Damit man relevante Nuklide aus der Probe schon in geringer Konzentration oder kürzerer Messzeit zuverlässig nachweisen kann, ist es unabdingbar, die Untergrundeffekte zu reduzieren. In der Vergangenheit wurde dies bereits realisiert, indem die Messanordnung mit Plastikdetektoren umgeben wurde. Bei Registrierung von hochenergetischen Teilchen durch diese Detektoren wurde ein Signal generiert, dass die Auswertung von Messwerten in einem gewissen Zeitintervall untersagt. Somit konnten Ereignisse ausgeblendet werden, die nicht aus der Probe stammen.

Das Problem war jedoch, dass viele von diesen Ereignissen gar nicht zum Detektor selbst gelangten und auf diese Weise unnötig Totzeit erzeugt wurde.

1.  $\gamma$ -Strahlung aus der Umgebung
2. Kontamination der Materialien des Detektorsystems
3. Radioaktivität aus der Abschirmung
4. Radon und seine Folgeprodukte
5. Kosmische Strahlung
6. Neutronenstrahlung

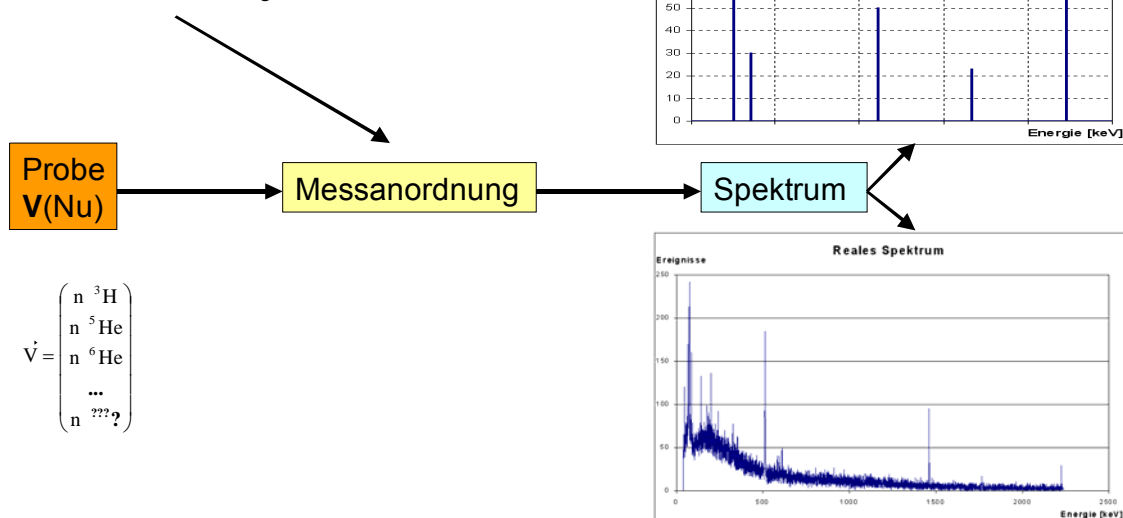


Abbildung 3: Einflüsse der Untergrundbeiträge auf das Gammaskpektrum

Im Verlauf dieser Arbeit wurde die bestehende Messanordnung so konfiguriert, dass nur dann Signale ausgeblendet werden, wenn sie zeitgleich in den umgebenden Plastikdetektoren und im Germaniumdetektor registriert wurden. Die Zahl der Vetoimpulse konnte um einen Faktor 55 verringert werden.

Des Weiteren wurden jetzt noch Effekte berücksichtigt, die durch Neutronenreaktionen hervorgerufen wurden, indem die Messanordnung mit einer Schicht aus Paraffin umgeben wird. Paraffin eignet sich wegen dem hohen Anteil an Wasserstoffatomen sehr gut zum Abbremsen von schnellen Neutronen. Die Abschirmung der Anordnung ist in der nachfolgenden Abbildung 4 dargestellt.



Abbildung 4: Messanordnung mit Paraffinblöcken

---

Durch den Einsatz von Paraffin und der neuen Schaltung lässt sich die Untergrundreduktion von bislang 47,0% auf 48,8% erhöhen. Zukünftige Entwicklungen könnten dahin gehen, die optimale Dicke der Paraffinschicht zu bestimmen und die Zeit des Koinzidenzfensters (gibt an, wie viel Zeitversatz zwischen Signal in den Plastikdetektoren und dem Germaniumdetektor sein darf) anzupassen.

## 2.2.2 Aufbau eines mobilen Detektors zur Messung des Myonenflusses

I. Swillus, Chr. Wilhelm

Das physikalische Messlabor des Forschungszentrum Karlsruhe betreibt ein Gammaskpektrometrielabor, in dem auch Messungen von sehr geringer Probenaktivität (Low-Level-Messungen) durchgeführt werden. Hier kommt es auf einen sehr geringen Untergrund während der Messungen an, die bereits durch verschiedene Maßnahmen optimiert wurden.

Der Großteil des Untergrundes entsteht durch die sekundäre Komponente der kosmischen Strahlung, insbesondere durch kosmische Myonen. Deswegen ist es interessant, den Myonenfluss am Standort der Messgeräte zu kennen.

Myonen gehören formal zu den Leptonen, sind einfach positiv geladen und haben eine Ruhemasse, die dem 207-fachen eines Elektrons entspricht. Die Energieverteilung der Myonen auf Meereshöhe erstreckt sich über mehrere Größenordnungen bis in einen Bereich von weit über 100 GeV.

Es ist es prinzipiell möglich Myonen über Cherenkoveffekt nachzuweisen (Studienarbeit I. Swillus, Berufsakademie Karlsruhe).

Im Verlauf einer Diplomarbeit (I. Swillus, Berufsakademie Karlsruhe) wurde ein Detektorsystem aus einer mit Wasser gefüllten, handelsüblichen Thermoskanne aufgebaut, auf die ein Photomultiplier aufgebracht wurde, um das entstehende Cherenkov-Licht zu detektieren.

Fliegt ein Myon durch die mit destilliertem Wasser gefüllte Kanne löst dieses einen Lichtblitz im Wellenlängenbereich zwischen 290 nm und 600 nm aus, der dann vom Photomultiplier registriert wird und in ein elektrisches Signal umgewandelt wird. Diese Signale werden verstärkt und im Vielkanalanalysator einer Impulshöhe zugeordnet. Das so entstehende Spektrum ist in nachstehender Abbildung 5 zu sehen.

Das Impulshöhenspektrum ist mit und ohne Wasser in der Thermoskanne aufgenommen worden, um zu zeigen, dass die durch Cherenkov-Licht erzeugten Signale eine andere Impulshöhe haben, als die Signale, die durch Untergrundrauschen der Elektronik und des Photomultipliers entstehen. Durch die unterschiedlichen Impulshöhen ist es möglich die Signale zu unterscheiden und auch zu trennen. Damit hat sich gezeigt, dass das Detektorsystem zum Nachweis von Myonen geeignet ist.

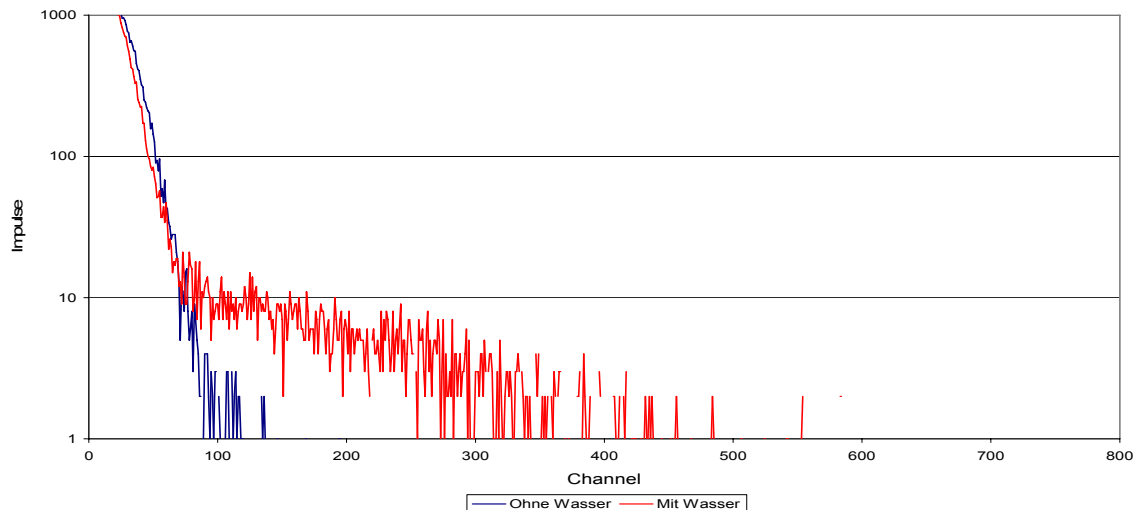


Abbildung 5: Impulshöhenspektrum. Aufgenommen mit dem Thermoskannendetektor mit und ohne Wasserfüllung bei einer Spannung von 1670 V und einer Messzeit von 1000 s

Im Verlauf der Arbeit wurde die für die Vorversuche verwendete NIM-Elektronik durch eine Standardelektronik ersetzt. Das Messsystem kann nun in einem Koffer transportiert und mit einem herkömmlichen Netzanschluss betrieben werden.

Weiterhin sind Messungen an verschiedenen Stellen in Gebäuden, sowie eine Optimierung der Zählhausbeute durch den Einsatz von verschiedenen Medien in der Thermoskanne geplant. Auch eine Vergleichsmessung mit dem Myonendetektorsystem MUDOS der Physikalisch Technischen Bundesanstalt wird derzeit angestrebt, um die vom Messsystem angezeigte Rate in einen Myonenfluss  $\Phi$  zu kalibrieren.

### 2.2.3 Validation and automation of a gamma spectrometric analysis method for natural occurring radionuclides in different materials (NORM)

O. Marzocchi (Student of University of Bologna), Chr. Wilhelm

Analyses of NORM material with gamma spectrometry become more and more important. The time needed now in the lab for a full analysis is up to two hours. The aim of the project is a substantial reduction of the time required for analyses of NORM samples (Master Thesis O. Marzocchi University of Bologna).

With the current analysis procedure, a big amount of user interaction is required in all the major steps because the standard routines are suboptimal when applied to NORM samples. The spectra of NORM samples are characterized by the presence of many energy lines, often overlapping, and of a continuum level not flat. As result, the software with its peak locate and peak area calculation algorithm is not able to discern and to fit all peaks correctly and the user has to heavily work on the peak results. This is a time consuming process because it requires to go back and forth between different applications and windows, each one not optimized.

---

To solve this problem, the software analysis sequence has been changed and a new software based on standard routines of the Canberra Genie software is currently under development. The counting procedure has been kept unchanged.

The new analysis sequence uses a different approach to find peaks in the spectrum, so it's able to find more peaks without user interaction. The concept is the following: instead of marking peaks only where the algorithm is able to find them, we mark peaks also wherever there could be an energy line (a library of energy lines is needed). The key discovery is that discarding non-existent peaks is more accurate than finding peaks by analyzing the spectrum. A list of important peaks has also been included and is automatically shown, in order to be sure that no key peaks are missed (Abbildung 6).

The new software will group all the functions needed during the sample analysis into a unified interface and will use a custom routine for the peak identification (the step where peaks in the spectrum are assigned to nuclides listed in an external library).

The interface is designed to always give the user every data he needs, without having to cycle windows and/or applications. In each step of the analysis, the user is also able to go back to the spectrum, to check the original data and to correct the fitting. In addition, in the last step a graphical display of the activities of the nuclides of each decay chain is shown, previously calculated by hand (Abbildung 7 and Abbildung 8).

The new routine for peak identification bypasses the standard Genie functions and compares directly the list of peaks of the spectrum with the energy lines listed in a nuclide library. The software development is still ongoing. At the time being, the user interface has been chosen and optimized and the coding has started.

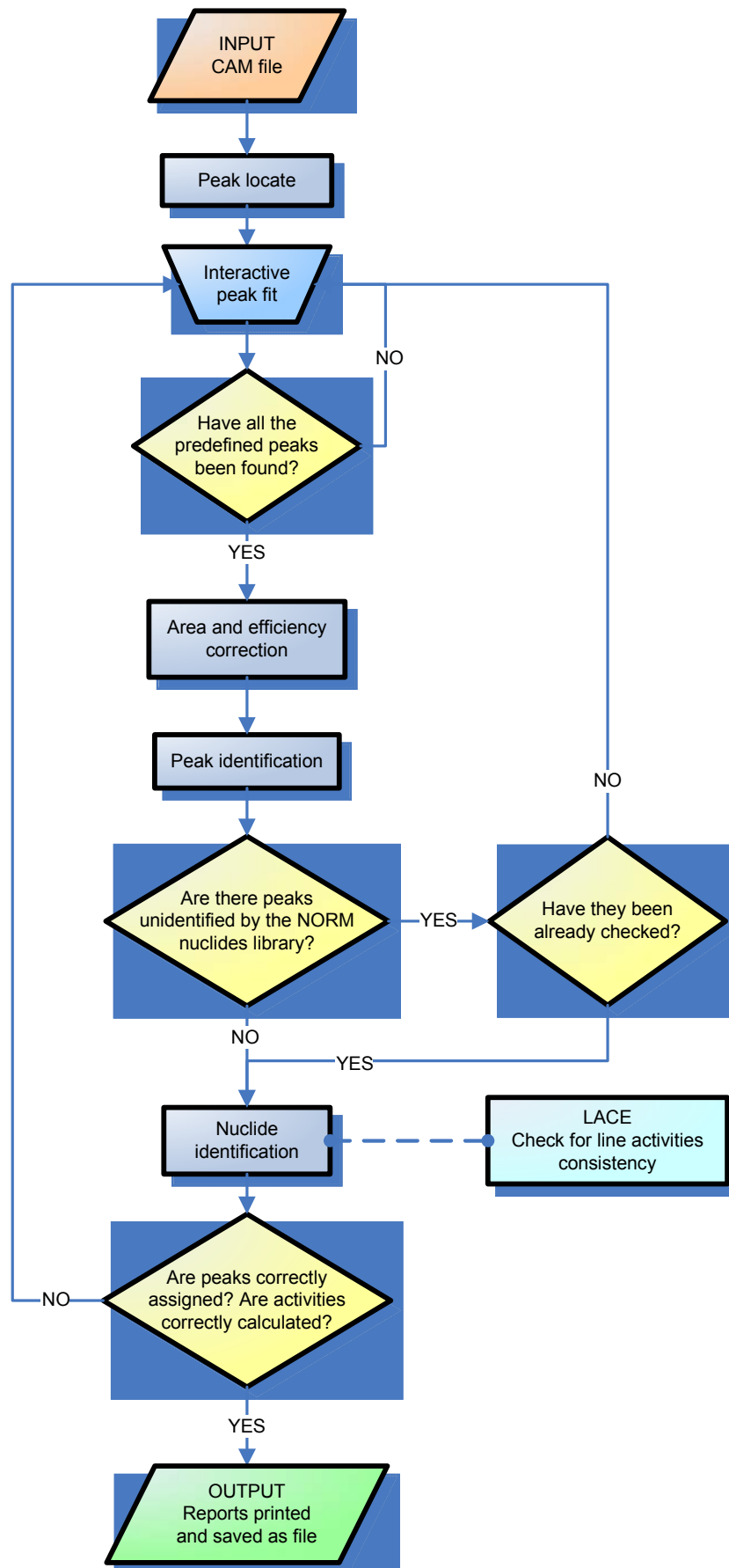


Abbildung 6: Flow chart of the software structure.

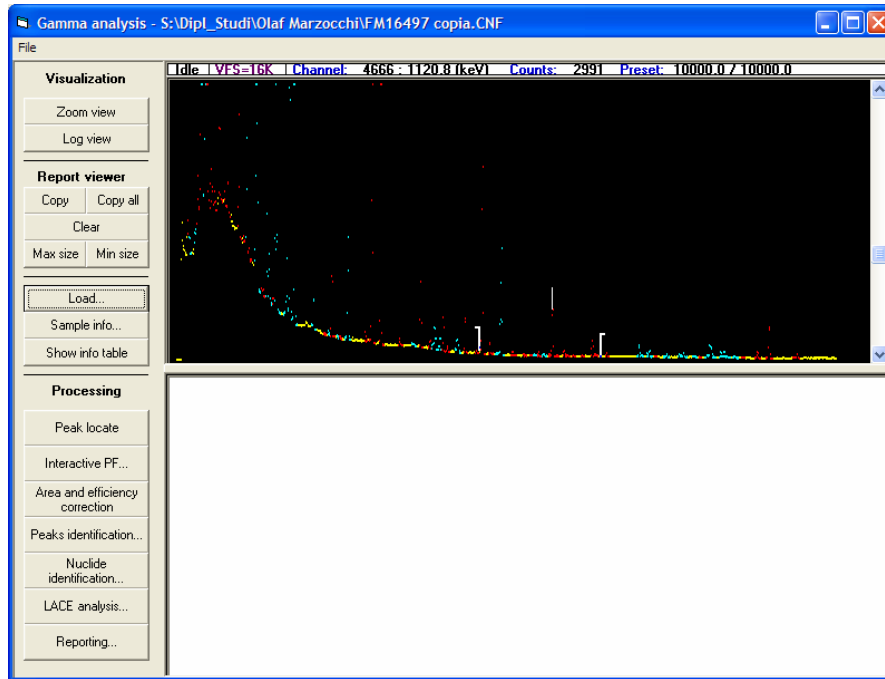


Abbildung 7: The screenshot shows the main window, with the spectrum always visible in the upper right part, the report on the bottom right and the buttons for the different actions on the left.

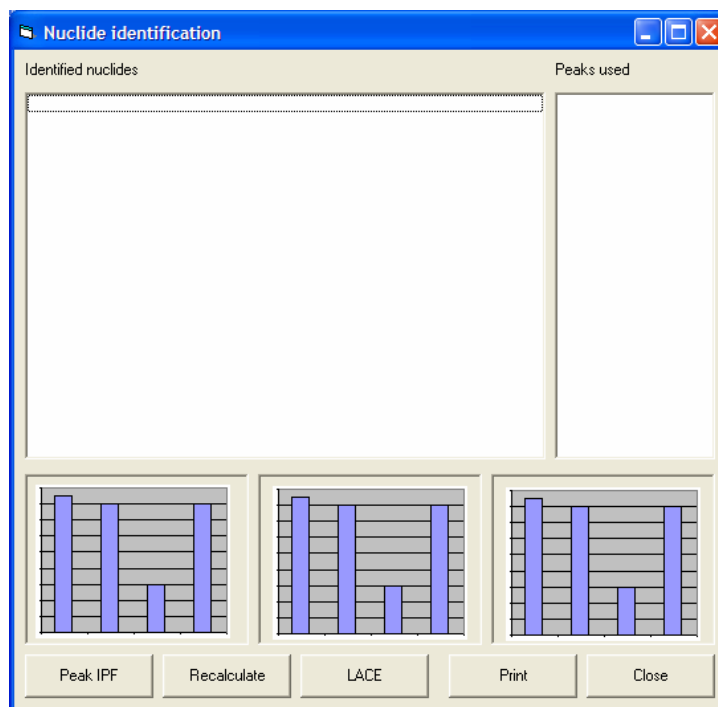


Abbildung 8: The screenshot is the nuclide identification window, where the final results about found nuclides are shown on the left, peaks used for each nuclide identification are shown on the right and the decay chains equilibrium are plotted on the bottom. As usual, the user can go back to the peak fitting with the first button.



---

## 3 Dosimetrie in gemischten Neutronen/Photonen Strahlungsfeldern

F. Becker, S. Nagels, B. Burgkhardt,

Am Forschungsreaktor TRIGA (Training Research Isotopes General Atomics) der Johannes Gutenberg Universität Mainz laufen Voruntersuchungen einer Bor-Neutroneneinfang-Therapie (BNCT = Boron Neutron Capture Therapy) zur Behandlung von Lebermetastasen.

Bei der BNCT wird dem Patienten ein mit Bor angereichertes Medikament appliziert, das sich bevorzugt an Tumorzellen anlagert. Das natürliche Isotop B-10 besitzt einen ungewöhnlich hohen Wirkungsquerschnitt für den Einfang thermischer Neutronen, wobei die aus der Reaktion  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  entstehende kurzreichweitige Strahlung gezielt die Tumorzellen zerstört.

Thermische Neutronen produziert der TRIGA Reaktor, ein Schwimmbeckenreaktor, der ausschließlich für die Forschung, Ausbildung und Isotopenproduktion eingesetzt wird. Der Reaktor verfügt über eine geeignete großvolumige Bestrahlungseinrichtung, die so genannte thermische Säule [Kre05].

Für die Therapie müssen die Strahlungsfeldparameter genau bekannt sein, die Bestrahlungsbedingungen optimiert und die verschiedenen Komponenten der Strahlendosen für das Organ zuverlässig ermittelt werden.

Bei der Bestrahlung am TRIGA treten bei der Bestrahlung nicht nur die Neutronen auf, auch ein Photonenanteil ist bei der Bestimmung der Dosis zu berücksichtigen.

### 3.1 Kalibrierung von $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ -Detektoren mit Energiekompensationsfilter im PTB-Referenzfeld für thermische Neutronen

F. Becker, S. Nagels, B. Burgkhardt, R. Böttger (PTB)

Beim Einsatz von Thermolumineszenzdetektoren (TLD) des Typs TLD-300 ( $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ ) zur Bestimmung des Dosisanteils von Photonen in gemischten Photon-Neutronfeldern ist auch die Kenntnis des Ansprechvermögens  $R_{\text{th}}$  für thermische Neutronen wichtig. Damit kann beim Einsatz zur Photonendosismessung der Messwertanteil durch die thermischen Neutronen subtrahiert werden, der bei den hohen Neutronenfluenzen nicht mehr zu vernachlässigen ist. Wird der Detektor mit Energiekompensationsfiltern eingesetzt, interessiert auch deren Einfluss auf das Messergebnis hinsichtlich Abschirmung und einer möglichen Aktivierung durch thermische Neutronen.

Diese Untersuchungen wurden in der Neutronen-Bestrahlungseinrichtung Geesthacht (GeNF: Geesthacht Neutron Facility) durchgeführt. Das von der PTB betriebene Neutronenreferenzfeld besitzt einen sehr geringen Gammauntergrund und einen praktisch vernachlässigbaren Anteil an epithermischen Neutronen [Kre05].

---

Der Neutronenreferenzstrahl, mit  $\sim 10^6$  Neutronen/s bei einem Targetstrahlfleck von  $\sim 30 \times 30 \text{ mm}^2$ , hat eine inhomogene Fluenzverteilung. Daher werden im Allgemeinen zu bestrahlende Targets (z. B. auch Dosimeter) auf einer Fläche von  $\sim 30 \times 30 \text{ cm}^2$  „gescannt“. Dadurch ist die effektive Neutronenfluenz noch geringer, so dass bislang das Ansprechvermögen  $R_{th}$  für TLD-700( $^7\text{LiF}$ )-Detektoren bei einer Langzeitbestrahlung über Nacht genau bestimmt, für die TLD-300 aber nur eine obere Grenze für das Ansprechvermögen ( $R_{th} < 3,5 \cdot 10^{-11} \text{ mGy} \cdot \text{cm}^2$ ) angegeben werden konnte [Bur06]. Bei einer im Frühsommer durchgeführten Messung wurde der Targetstrahlfleck auf 10 mm Durchmesser verkleinert und das TLD-300 ohne Scan über Nacht bestrahlt. Dies ergab für die höhere Neutronenfluenz einen Wert für  $R_{th}$  von  $3,2 \cdot 10^{-11} \text{ mGy} \cdot \text{cm}^2$ . Bei dieser Untersuchung wurden auch 2 mm dicke Zinnkapseln der Universität Mainz eingesetzt. Für die Messwerterhöhung durch die Zinnaktivierung konnte ein Ansprechvermögen von  $R_{Sn} = 2,9 \cdot 10^{-11} \text{ mGy} \cdot \text{cm}^2$  ermittelt werden. Zum Vergleich wurde in der gleichen Position auch ein TLD-700-Detektor bestrahlt, der die gleiche Größe von  $3 \times 3 \times 1 \text{ mm}^3$  hatte wie das TLD-300 und für den im vorangegangenen Experiment  $R_{th}$  bereits bestimmt wurde. Das unter Verwendung der Neutronenfluenz für den 10 mm-Targetstrahlfleck ermittelte  $R_{th}$  wich um 30 % vom vorher bestimmten ab. Zur Abklärung konnte in einem weiteren vor kurzem durchgeführten Experiment die Scanfläche erstmals verkleinert werden. Die Auswertung dieser Daten ist zum Zeitpunkt dieses Berichtes noch nicht abgeschlossen.

### 3.2 Optimierung der Energiekompensationsfilter und Verbesserung des Messverfahrens für TLD-300

A. Herzenstiel, S. Nagels, F. Becker, B. Burgkhardt

Zur Bestimmung des Dosisanteils durch Photonen in einem gemischten Photonen-Neutronen-Strahlungsfeld eignen sich Thermolumineszenzdetektoren TLD-300 aufgrund des geringen Ansprechvermögens für thermische Neutronen besonders gut. Die TLD-300, die aus Thulium dotierten Calciumfluorid ( $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ ) bestehen, haben den Nachteil einer Überempfindlichkeit für weiche Photonenstrahlung.

Ein erster Schritt war die Ermittlung eines geeigneten Energiekompensationsfilters zur Reduzierung dieser Überempfindlichkeit. Ein weiterer Schritt bestand darin, im Rahmen einer Zusammenarbeit mit der Universität Mainz und dem Forschungszentrum Karlsruhe Testmessungen zum Dosisanteil der Photonen in der thermischen Säule des TRIGA Reaktors durchzuführen (Projektarbeit A. Herzenstiel, Berufsakademie Karlsruhe).



Abbildung 9: Verwendete Zinnkapseln als Energiekompensationsfilter

Geeignete Zinn- und Wismutfilter verschiedener Dicke wurden als Energiekompensationsfilter eingesetzt, um die Photonenenergieabhängigkeit für  $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ -Detektoren im Hinblick auf den Einsatz in der Bor-Neutroneneinfang-Therapie zu optimieren.

Neben 2 mm dicken Zinnkapseln der Universität Mainz (siehe Abbildung 9) wurden 1,5 mm und 2,5 mm dicke Zinnfilter sowie ein 1 mm dicker Wismutfilter bei der Bestrahlung eingesetzt und deren Photonen-Ansprechvermögen  $R$  im Energiebereich mit der gefilterten Röntgenstrahlung (DIN A-Serie) von 17 keV bis 247 keV und Cs-137 Photonenstrahlung (662 keV) ermittelt.

Durch Kombination des Ansprechvermögens der verschiedenen Materialien mittels eines Algorithmus der gewichteten Summe konnte die optimale Filterkombination für eine weitgehend energieunabhängige Anzeige ermittelt werden.

Das beste Ergebnis lieferte die Energiekompensation durch 1,5 mm Zinn und 1 mm Wismut; hier ist das Ansprechvermögen für Energien  $> 30$  keV nahezu konstant und die Abweichung des Ansprechvermögens vom Wert 1 kleiner als 10%. (siehe Abbildung 10, links). Leider ist Wismut ein sehr sprödes Material und dadurch schlecht zu bearbeiten.

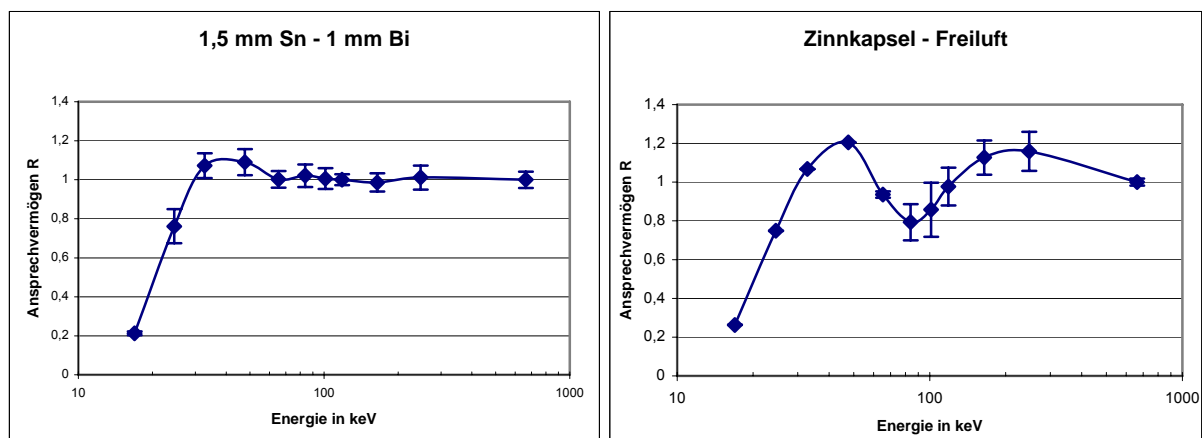


Abbildung 10: Photonen-Ansprechvermögen  $R$  als Ergebnis der Energiekompensation durch 1,5 mm Sn und 1 mm Bi bzw. durch Freiluft und 2 mm Zinnkapsel

Deshalb ist in Betracht zu ziehen, die Kombination Zinnkapsel – Freiluft einzusetzen, mit der bei einer Abweichung des Ansprechvermögens vom Wert 1 mit  $\pm 20\%$  auch ein gutes Ergebnis erzielt werden kann (Abbildung 10, rechts).

Zum Test der Energiekompensationsfilter wurden Messungen der optimierten Detektoren am Forschungsreaktor TRIGA in der thermischen Säule in Freiluft und in einem Phantom durchgeführt. Es wurden die TLD-300 in das Plexiglasphantom eingebracht oder in eine Plexiglasscheibe mit verschiedenen Abschirmungen gelegt. Ein 9 cm dicker Wismutblock diente zur Abschirmung des Gammauntergrundes des Reaktors. Die Plexiglasscheibe wurde einmal mit und einmal ohne Wismutblock bestrahlt.

Die Ergebnisse ohne Phantom sind in Abbildung 11 dargestellt. Durch den Wismutblock wird der Photonenanteil in der thermischen Säule um etwa 30 % verringert. Im Vergleich mit den Photonendosis-Messwerten der TLD-300 ohne Energiekompensationsfilter (als Freiluft auf

der Abszisse bezeichnet) liegen die Dosiswerte mit Energiekompensationsfilter (E-komp) um 5 % bzw. 15 % tiefer (Filterkombination von 2 mm-Zinnkapsel + ohne Filter bzw. 1,5 mm Zinn + 1 mm Wismut).

So beträgt zum Beispiel die Luftkerma  $K_a$  für Freiluft 45,1 mGy, mit der ersten Filterkombination 43,1 mGy und mit der zweiten 38,9 mGy. Es ist also mit einem kleinen Anteil weicher Photonen in der thermischen Säule auch hinter dem allerdings nur in Strahlrichtung wirksamen Wismutblock zu rechnen. Wegen der Größe der verwendeten Filter lagen die Detektoren bei den Messungen jedoch mindestens 2 cm auseinander, worauf zum Teil der Unterschied der Ergebnisse der beiden Filterkombinationen zurückzuführen ist. Die Messungen sollten mit einer kompakteren Filterkombination wiederholt werden, damit beide Filter annähernd das gleiche Strahlenfeld sehen. Erst dann lässt sich auch klären, ob der zusätzliche Einsatz von Wismutfiltern am TLD-300 eine Verbesserung der Photonendosisbestimmung in der thermischen Säule ermöglicht.

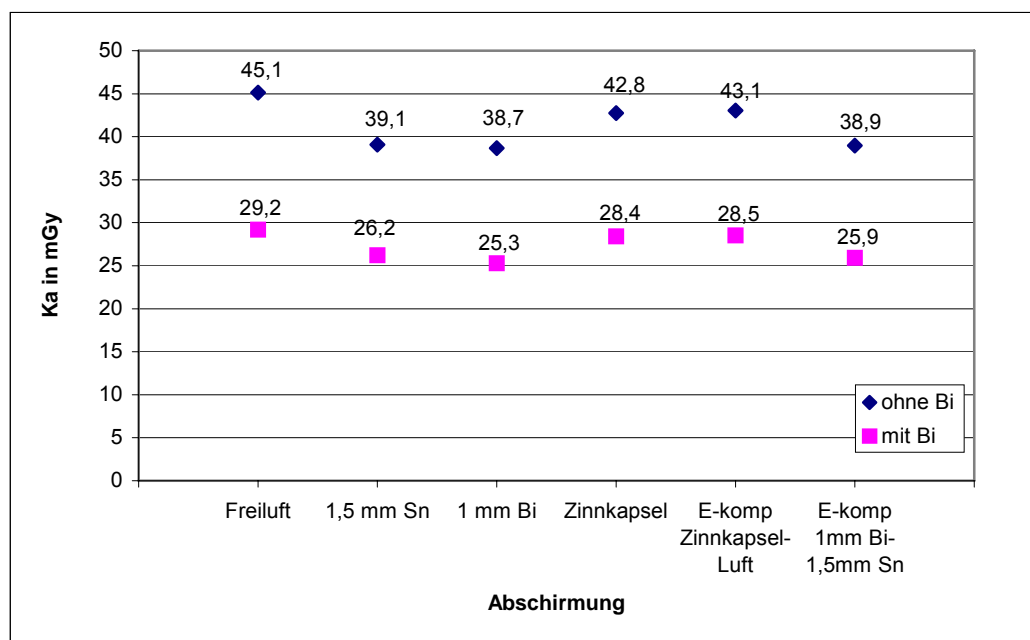


Abbildung 11: Ermittelte Dosiswerte (Luftkerma  $K_a$ ) der Bestrahlung mit und ohne Wismutblock (mit Bi bzw. ohne Bi). Mit Freiluft sind die Messungen ohne Filter gemeint, Energiekompensationsfilter wird als E-komp abgekürzt

Bei einem weiteren Versuch wurden Detektoren mit und ohne Zinnkapsel von 2 mm Wandstärke in ein Plexiglasphantom eingebracht. Es konnte der Photonen-Dosisverlauf nach Korrektur der Zinnaktivierung und des Restansprechvermögens der TLD-300 durch thermische Neutronen und der Energiekompensation mit einer Unsicherheit von kleiner 15 % ermittelt werden. In Tabelle 3 sind für die Messung mit der Zinnkapsel nicht nur das Photonendosisergebnis  $K_{a,Ph}$ , sondern auch der unkorrigierte Messwert  $K_{a,i}$  und die zu subtrahierenden Dosisanteile  $K_{a,th}$  und  $K_{a,Sn}$ , induziert durch die thermischen Neutronen, aufgelistet. Für die TLD-300 ohne Filter wird nur das Photonendosisergebnis  $K_{a,Ph}$  angegeben. Aus beiden Photonendosisresultaten ergibt sich nach Anwendung des Algorithmus der Energiekompensation das Endergebnis  $K_{a,Ph}$ . Der Neutronenfluss wurde hier mit Goldfolienaktivierung bestimmt.

Phantomtiefe [mm]	mit Zinnkapsel				ohne Zinn- kapsel	Energie- kompensation
	$K_{a,i}$ [mGy]	$K_{a,th}$ [mGy]	$K_{a,Sn}$ [mGy/5min]	$K_{a,Ph}$ [mGy]	$K_{a,Ph}$ [mGy]	$K_{a,Ph}$ [mGy]
0,0	39,1	1,30	4,09E-03	37,84	40,07	38,12
27,5	40,3	1,18	3,72E-03	39,17	40,91	39,38
115,0	31,3	0,80	2,52E-03	30,52	34,16	30,96
202,5	20,5	0,42	1,32E-03	20,12	22,27	20,39
230,0	16,6	0,30	0,95E-03	16,29	16,64	16,34

Tabelle 3: Ergebnisse der Berechnung des Photonenanteils mit und ohne Zinnkapsel nach einer Bestrahlung des Plexiglasphantoms in der thermischen Säule

mit:

$K_{a,i}$  gemessene Dosis individuell für jeden Detektor in Luftkerma

$K_{a,th}$  erwarteter Dosisanteil durch thermische Neutronen in Luftkerma

$K_{a,Sn}$  erwarteter Dosisanteil durch Zinnaktivierung in Luftkerma

$K_{a,Ph}$  erwarteter Dosisanteil durch Photonen in Luftkerma

In Abbildung 12 sind die Ergebnisse von  $K_{a,Ph}$  (Tabelle 3, letzte Spalte) gegen die Phantomtiefe aufgetragen. Aufgrund von Streu- und Aufbauwirkungen steigt die Kurve bis ca. 30 mm Tiefe leicht an, anschließend nimmt die Dosis nahezu linear ab.

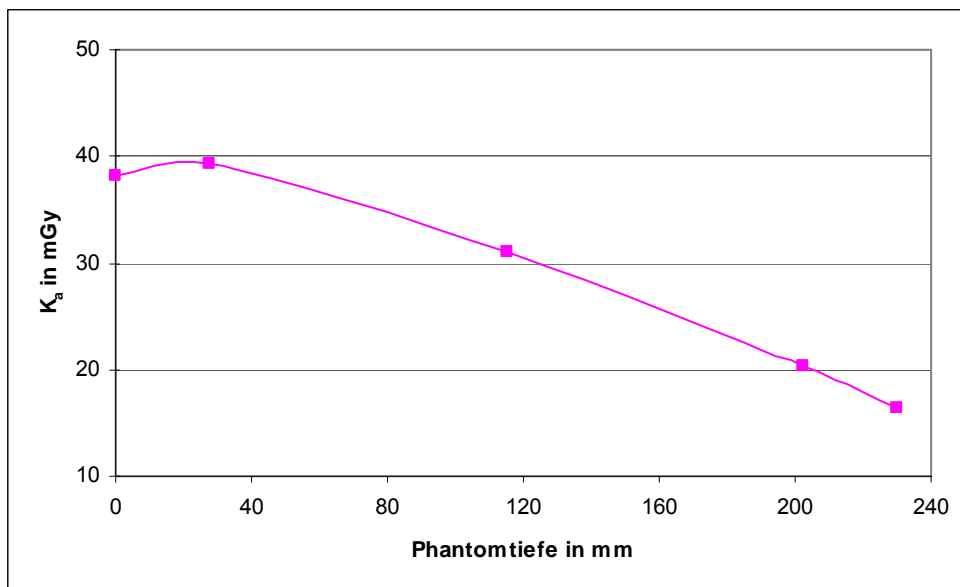


Abbildung 12: Verlauf der energiekompensierten Dosis (Luftkerma  $K_a$ ) in Abhängigkeit von der Phantomtiefe

Die im Rahmen dieser Projektarbeit [Her06] gewonnenen, viel versprechenden Ergebnisse sind Gegenstand weiterer Untersuchungen.

---

## 4 Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Körper: In-Vivo-Diagnostik, Biokinetik, Dosimetrie

### 4.1 In-Vivo-Diagnostik

#### 4.1.1 Entwicklung eines Verfahrens zur numerischen Kalibrierung von Teilkörperzählern

B. Heide, M. Sohlin, H. Doerfel

Der Fehler bei der Aktivitätsbestimmung mit Hilfe von Teilkörperzählern (vgl. Abbildung 13) wird in führender Ordnung von dem systematischen Fehler bzgl. der Wirkungsgrad-Kalibrierung beeinflusst. Dies gilt insbesondere für inhomogene Nuklidverteilungen sowie für niederenergetische  $\gamma$ -Strahler, wie z. B. für Am-241, Pb-210 oder U-235.

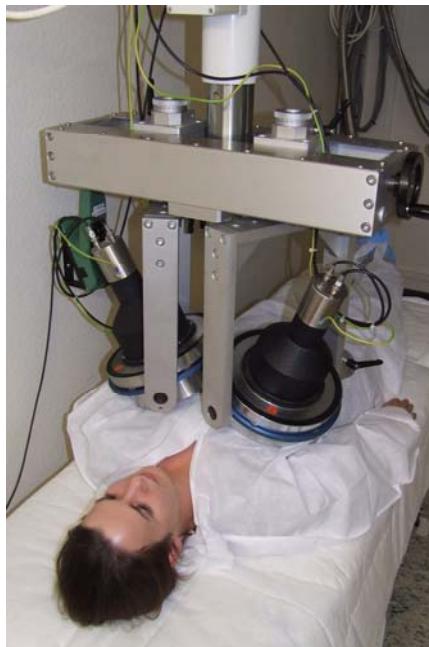


Abbildung 13: Teilkörperzähler mit Phoswich-Detektoren der Hauptabteilung Sicherheit

Der Wirkungsgrad ist abhängig von der Geometrie zwischen dem Probanden und dem Detektorsystem, von der Aktivitätsverteilung im Körper des Probanden, von den durchstrahlten Gewebeschichten, sowie von der Energie der emittierten Photonen. Die ersten drei Faktoren hängen von den individuellen Körperproportionen ab und können daher mit anthropomorphen Phantomen meist nur unzureichend genau ermittelt werden.

Zur Verbesserung der Wirkungsgradbestimmung wurde ein numerisches Verfahren entwickelt, mit dem die Kalibrierfaktoren für Teilkörperzähler individuell berechnet werden können.

Das Verfahren ist in Abbildung 14 für den Fall einer Teilkörpermessung mit Phoswich-Detektoren schematisch dargestellt. Als Basis des Verfahrens dienen das Voxelmodell „MEETMan“ [Sac97] und das stochastische Strahlentransportprogramm „MCNP5“ [Pel05].

Bei dem Verfahren werden mit Hilfe eines Zufallsgenerators diejenigen (Quell-) Voxel des Voxelmodells ausgewählt, von denen ein  $\gamma$ -Quant mit vorgegebener Energie isotrop ausgesandt wird. Für jedes  $\gamma$ -Quant wird sodann unter Berücksichtigung von Streueignissen der Weg nachempfunden und – falls es den Detektor trifft – die im Detektor abgegebene Energie berechnet. Mit der Anzahl der ausgesandten  $\gamma$ -Quanten und der Anzahl der zu einer bestimmten Energie, d. h. zu einem bestimmten Peak gehörenden  $\gamma$ -Quanten ist der Wirkungsgrad festgelegt.



Abbildung 14: Schematische Darstellung der Simulation einer Teilkörpermessung mit Phoswich-Detektoren

Zur Implementierung des Verfahrens wurden zunächst einfache Simulationen für Punktstrahler an bestimmten Referenzpunkten in der Messzelle des Teilkörperzählers durchgeführt. Auf diese Weise wurden für die beiden Phoswich-Detektoren sowie für die vier HPGe-Detektoren des Teilkörperzählers sowohl die Geometrieabhängigkeit als auch die Energieabhängigkeit des Wirkungsgrades für Punktstrahler berechnet und mit den entsprechenden Messwerten verglichen. Anhand des Vergleichs wurden verschiedene Parameter wie z.B. die Packungsdichte des Reflektormaterials bei den Phoswich-Detektoren sowie das empfindliche Volumen der planaren Kristalle der HPGe-Detektoren empirisch ermittelt. Nach Anpassung dieser Parameter ergab sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und den berechneten Wirkungsgradwerten.

Danach erfolgte die explizite Implementierung des oben erwähnten Voxelmodells MeetMan in den Monte-Carlo-Code MCNP5. Hierbei wurde die Lattice-Struktur von MCNP5 verwendet. Zur Spiegelung des Voxelmodells, welche hinsichtlich der Positionierung des Modells von Bedeutung ist, wurde eine eigene Programm-Routine entwickelt, da die entsprechende MCNP5-Option (aus technischen Gründen) nicht angewandt werden konnte.

Nach der Implementierung des Voxelmodells wurden Simulationen des Strahlentransports von verschiedenen Quellbereichen (Lunge, Leber, Skelett) zu den Detektoren in verschiedenen Messpositionen (Lunge, Leber, Knie) durchgeführt. Die auf diese Weise ermittelten Kalibrierfaktoren wurden mit den an den anthropomorphen Phantomen in entsprechender Geometrie gemessenen Kalibrierfaktoren verglichen. Für diese Vergleiche wurden das Torso-Phantom vom „Lawrence Livermore National Laboratory“ sowie die Knochenphantome des „New York University Medical Centers“ und das Knochenphantom des „U.S. Transuranium and Uranium Registry“ herangezogen.

---

Beim Vergleich der Simulationsergebnisse mit den Messergebnissen des Torso-Phantoms zeigte sich, dass die für die Phoswich-Detektoren für Lungen- und Leberdepositionen berechneten Kalibrierfaktoren mit den am Torso-Phantom gemessenen Werten gut übereinstimmen. Allerdings ist das bei der Simulation ermittelte Wirkungsgradverhältnis der beiden Phoswich-Detektoren wesentlich größer als das gemessene Verhältnis. Diese Diskrepanz konnte auf Asymmetrien der Brustwandstärke beim MEETMan und beim Torso-Phantom zurückgeführt werden. Bei den HPGe-Detektoren ergibt sich bei Summierung über alle Detektoren eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und berechneten Wirkungsgradwerten. Bei den einzelnen HPGe-Detektoren können allerdings signifikante Diskrepanzen zwischen der Simulation und der Messung auftreten. Diese Diskrepanzen sind darauf zurückzuführen, dass bei den HPGe-Detektoren die Positionierung relativ zu den Rippen infolge des relativ geringen Kristalldurchmessers wesentlich stärker zum Tragen kommt als bei den Phoswich-Detektoren.

Beim Vergleich der Simulation mit den Messungen an den Knochenphantomen ergaben sich teilweise signifikante Unterschiede. So war der mit der Simulation ermittelte Gesamtwirkungsgrad der Phoswich-Detektoren für eine Am-241-Deposition im Skelett in der Knie-messposition signifikant geringer als alle an den Knochenphantomen gemessenen Werte. Im Gegensatz dazu war die Querempfindlichkeit der Phoswich-Detektoren für Am-241 im Skelett bei Messung über der Lunge bzw. über der Leber in der Simulation systematisch größer als die entsprechenden Phantomwerte. Dies liefert eine Erklärung für die in der Vergangenheit häufig beobachteten Inkonsistenzen der in den verschiedenen Messgeometrien abgeschätzten Teilkörperaktivitäten von Am-241 [Doe06\_1, Doe06\_2].

#### 4.1.2 Numerische Effizienzkalibrierung bei In-vivo-Messverfahren mittels an den Probanden angepassten Voxelmodellen

L. Hegenbart, B. Heide

Im Rahmen einer Forschungsarbeit soll das unter Punkt 4.1.1 beschriebene Verfahren zur Bestimmung des Wirkungsgrades verbessert werden. Verbesserungen sind bei der Umsetzung der folgenden Punkte zu erwarten:

- Erstellung von rechnergestützten Werkzeugen, die weitgehend automatisiert MCNP-Input-Dateien erzeugen sowie MCNP-Output-Dateien auswerten und darüber hinaus den parallelen Einsatz mehrerer Rechner erlauben.
- Optimale Erfassung der Abstände zwischen dem Probanden und den Detektoren.
- Individuelle Anpassung des Voxelmodells an den jeweiligen Probanden.



---

## Erstellung rechnergestützter Werkzeuge

Es wurden rechnergestützte Werkzeuge geschaffen, mit denen das Erstellen eines Simulationsszenarios wesentlich einfacher gelingt. Hierbei wird ein Computerprogramm durch den Benutzer mit allen erforderlichen Daten über Geometrien, Voxelmodell und Informationen zu den Radionukliden versorgt. Dieses Programm erzeugt anschließend eine Input-Datei für die Simulation mit MCNP. Die Simulationsergebnisse können zur weiteren Analyse in MS-Excel exportiert werden. Weiterhin ist es möglich, die Szenarien dreidimensional auf dem Bildschirm zu visualisieren (siehe Abbildung 15).

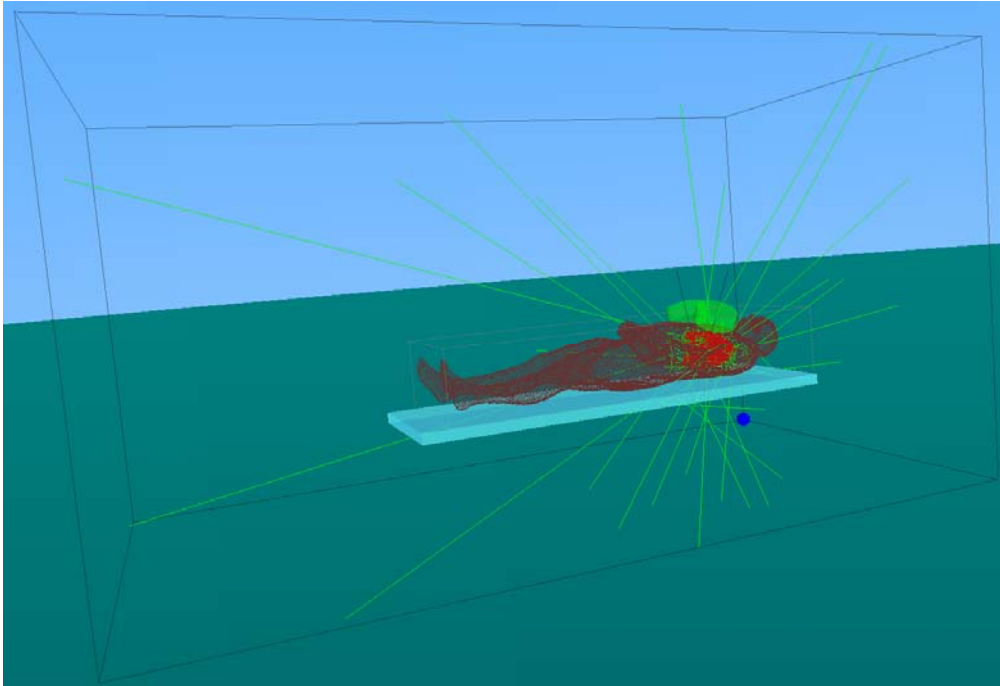


Abbildung 15: 3D-Visualisierung eines Messszenarios. Die Wege einer Auswahl von  $\gamma$ -Quanten sind grün dargestellt.

Um die Zeit für die Computersimulation in praktikablen Grenzen zu halten, wurde das Message Passing Interface (MPI) in einem heterogenen Computer-Cluster implementiert. Der Cluster besteht aus derzeit sechs PCs mit Doppelprozessoren mit einer Taktfrequenz zwischen 3 GHz und 3,4 GHz. Über eine MPI-Client-Software können die Rechner mittels einem 100-MBit/s-Netzwerk untereinander kommunizieren. Da MCNP das MPI unterstützt, können Inputfiles von mehreren Rechnern gleichzeitig berechnet werden. Die Ergebnisse liegen dadurch in einer deutlich kürzeren Zeit vor. In einem Versuch rechnete ein Rechner mit einem Prozessor ca. 2,5 Stunden an einem Inputfile. Fünf Rechner, auch mit je einem Prozessor, berechneten dieses Inputfile via MPI in nur wenig mehr als einer halben Stunde.

### Optimale Erfassung der Abstände zwischen dem Probanden und den Detektoren

Um reale Messungen mit numerischen Simulationen vergleichen zu können, müssen die geometrischen Abmessungen in der Simulation mit der Realität übereinstimmen. Um eine Vorstellung davon zu bekommen, wie genau man diese Abmessungen bestimmen muss, wurde die folgende Sensitivitätsanalyse durchgeführt.

Es wurde das MEETMan-Voxelmodell in der Auflösung  $4 \times 4 \times 4 \text{ mm}^3$  virtuell auf die Liege der Messkammer platziert. Alle Lungenvoxel wurden als Am-241-Strahlenquelle definiert. 10 Millionen  $\gamma$ -Quanten wurden pro Simulation gestartet, wobei die Energien der  $\gamma$ -Quanten den Linien von Am-241 mit einer Emissionswahrscheinlichkeit  $> 1\%$  entsprachen. Als Region Of Interest (ROI) wurde der Bereich zwischen 20 keV und 80 keV gewählt. Die große Anzahl der simulierten Photonen erlaubte die Bestimmung des Wirkungsgrades bei allen Szenarien mit einer relativen Standardabweichung von unter 2,3 Promille.

Um die simulierten Messszenarien zu vergleichen, wurde ein Referenzszenario gewählt bei dem ein Phoswich-Detektor ähnlich wie bei einer realen Lungenmessung der Körperform entsprechend geneigt über der linken Brusthälfte positioniert wurde. Bei allen weiteren Messszenarien wurden die Detektorpositionen ausgehend von dem Referenzszenario in allen Raumrichtungen variiert.

Die Sensitivitätsanalyse ergab, dass horizontale und vertikale Neigungen von  $-10^\circ$  bis  $+10^\circ$  wenig Einfluss auf den Wirkungsgrad haben; die Änderungen im Wirkungsgrad lagen zwischen  $-1,7\%$  und  $0,8\%$ . Die größten Änderungen im Wirkungsgrad konnte man bei Variation der z- und besonders bei Variation der x- und y-Koordinate feststellen; die Wirkungsgradänderungen lagen im Bereich von  $-6\%$  bis über  $6\%$ . In Abbildung 16 ist dies für sechs ausgewählte Variationen veranschaulicht.

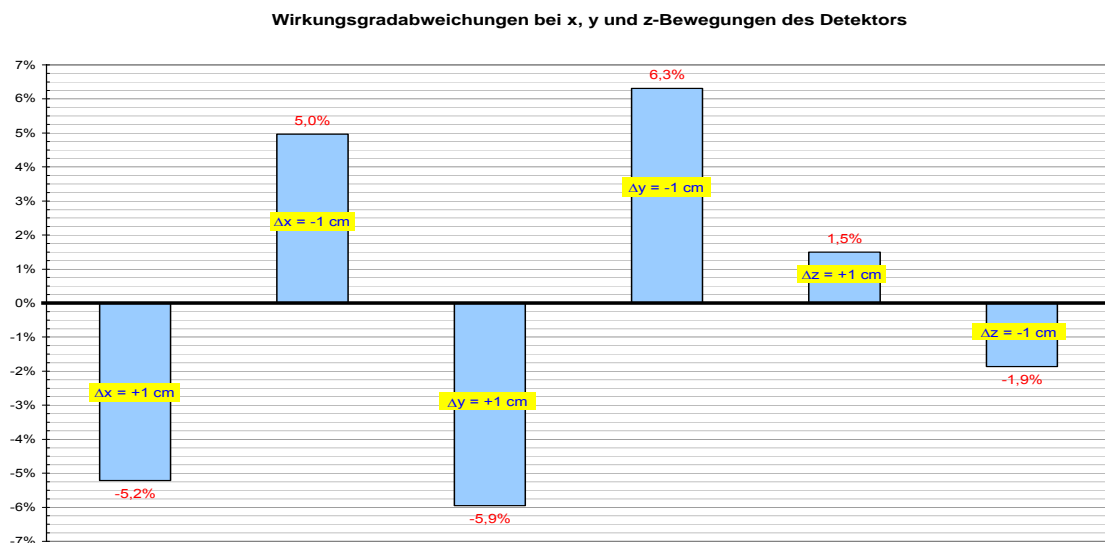


Abbildung 16: Sechs ausgewählte Werte von Wirkungsgradabweichungen bei x- (links nach rechts), y- (Rücken zum Bauch) und z- (Kopf zu Füßen) Bewegungen des Detektors relativ zur Referenzposition

Die Position von Detektor und Proband muss daher millimetergenau bestimmt werden, um die Abweichungen im Wirkungsgrad unter 3 % zu halten.

### Individuelle Anpassung des Voxelmodells an den jeweiligen Probanden

Die individuelle Anpassung eines vorhandenen Voxelmodells an den jeweiligen Probanden muss nach den unter Punkt 4.1.1 gewonnenen Erfahrungen über eine lineare Voxeltransformation hinausgehen. Sie ist aufwendig und nicht trivial. Der Arbeitsaufwand vergrößert sich,

---

wenn eine höhere Genauigkeit an die Anpassung des Voxelmodells erforderlich ist. Um die Güte der Anpassung zu untersuchen, wurde eine weitere Sensibilitätsanalyse durchgeführt.

Hierzu wurden die Auswirkungen einer veränderten Organposition und –größe auf den Wirkungsgrad untersucht. Erneut wurde ein Referenzszenario entworfen. Ähnlich wie bei der bereits dargestellten Sensitivitätsanalyse zur Detektorpositionierung, wurde das MEETMan-Voxelmodell in der Auflösung  $4 \times 4 \times 4 \text{ mm}^3$  virtuell auf die Liege der Messkammer platziert. Alle Lungenvoxel wurden als Am-241-Strahlenquelle definiert, wobei nur Linien beachtet wurden, deren Emissionswahrscheinlichkeit über 1% liegt. 10 Millionen  $\gamma$ -Quanten wurden pro Simulation gestartet und als ROI wurde der Bereich zwischen 20 keV und 80 keV gewählt. Die Bestimmung des Wirkungsgrades erfolgte bei allen Simulationen mit einer relativen Standardabweichung von unter 1,6 Promille. Im Gegensatz zur obigen Sensibilitätsanalyse wurden zwei Phoswich-Detektoren über der Brust positioniert, d. h. je ein Detektor über je einem Lungenflügel. Die Lunge des Voxelmodells wurde so manipuliert, dass zunächst eine Schicht von Lungenrandvoxel als Vakuum deklariert wurde. Das Lungenvolumen verkleinerte sich dadurch um etwa 26 %.

Es ergab sich, dass durch die Lungenverkleinerung zugunsten der Vakuumvoxel eine leichte Wirkungsgradverbesserung um etwa 2 % erreicht wurde. Dies war zu erwarten, da durch die Umdeklaration die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit verringert wurde und so mehr Photonen zum Detektor gelangen konnten. Gegenteiliges stellte sich heraus, als die Randvoxel nicht zu Vakuum sondern zu Wasser deklariert wurden (siehe Abbildung 17); Wasser hat mit  $1 \text{ g/cm}^3$  eine höhere Dichte als das Lungengewebe, welches in etwa auf eine Dichte von  $0,26 \text{ g/cm}^3$  kommt. Effektiv wurde die Brustwandstärke um 1 Wasser-Voxel, also um 4 mm vergrößert. Die Abnahme des Wirkungsgrades betrug hierbei etwa 4 %.

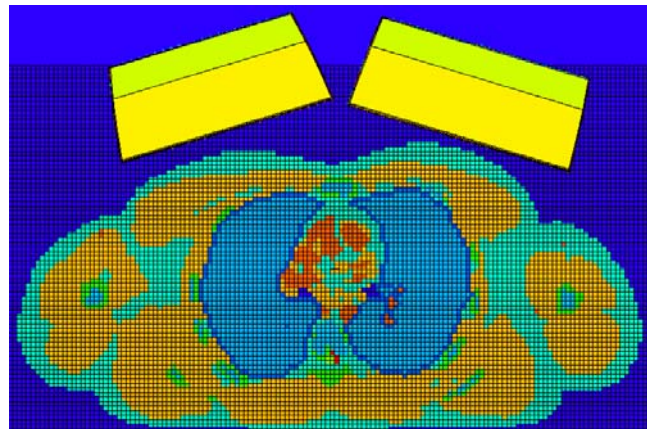


Abbildung 17: Schnitt durch den Thorax des manipulierten Voxelmodells inklusive beider Detektoren. Die dunkelblauen Randvoxel der Lunge sind hier als Wasser mit der Dichte  $1 \text{ g/cm}^3$  deklariert.

Die um ihre Randvoxel verkleinerte Lunge wurde um je 1 Voxel in alle drei Raumrichtungen verschoben werden. Dabei wurden lediglich Wasservoxel überdeckt. Frei werdende Voxelpositionen wurden wiederum mit Wasservoxel gefüllt. In Tabelle 4 sind die Ergebnisse dieser Versuchsreihe, unterteilt nach Füllvoxelart, dargestellt.

Messszenario	Lungen- volumen [L]	Wirkungs- grad beider Detektoren	Wirkungsgrad in Bezug zur Referenz	Wirkungsgrad- Abweichung zur Referenz
<b>Füllvoxel aus Vakuum</b>				
<i>Um ein Randvoxel verkleinerte Lunge (Referenz)</i>	2,97	0,04393	100,00%	0,00%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in positive y-Richtung	2,97	0,04549	103,55%	3,55%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in negative y-Richtung	2,97	0,04237	96,46%	-3,54%
<b>Füllvoxel aus Wasser</b>				
Lunge in Normalgröße und – position	3,75	0,04318	103,91%	3,91%
<i>Um ein Randvoxel verkleinerte Lunge (Referenz)</i>	2,97	0,04156	100,00%	0,00%
Um zwei Grenzvoxel verkleinerte Lunge	2,27	0,04004	96,34%	-3,66%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in positive x-Richtung	2,97	0,04155	99,99%	-0,01%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in negative x-Richtung	2,97	0,04147	99,78%	-0,22%
Referenzlungenflügel um 1 Voxel auseinander verschoben	2,97	0,04143	99,70%	-0,30%
Referenzlungenflügel um 1 Voxel zusammen verschoben	2,97	0,04161	100,13%	0,13%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in positive y-Richtung	2,97	0,04466	107,46%	7,46%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in negative y-Richtung	2,97	0,03854	92,74%	-7,26%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in positive z-Richtung	2,97	0,04067	97,86%	-2,14%
Referenzlunge um 1 Voxel verschoben in negative z-Richtung	2,97	0,04233	101,85%	1,85%

Tabelle 4: Änderungen im Wirkungsgrad bzgl. Positions- und Volumenänderungen der Lunge

Anhand der Tabelle 4 wird deutlich, dass durch die Verwendung von zwei Phoswich-Detektoren die x-Verschiebungen (Füllvoxel aus Wasser) nicht so stark den Gesamtwirkungsgrad ändern, wie das bei der zuvor dargestellten Detektorverschiebung der Fall war. Die Zugewinne und Verluste im Wirkungsgrad werden durch den zweiten Detektor nahezu ausgeglichen und bewegen sich je unter einem Prozent Abweichung zur Referenz. Die Verschiebung in z-Richtung bewirkt Änderungen des Wirkungsgrades um -2,14% bis 1,85%. Auffällig ist eine starke y-Abhängigkeit. Die Abweichungen des Wirkungsgrades gegenüber der Referenz (Füllvoxel aus Wasser) reichen von unter -7% bis über 7% wenn die Lunge um 1 Voxel vom Detektor weg bzw. hinbewegt wird. Durch die y-Verschiebung der Lunge mit Füllvoxel aus Wasser wird die effektive Brustwandstärke verändert, womit die starke Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Brustwandstärke bestätigt wird. Werden Vakuum-Füllvoxel verwendet, wird nur die geometrische Schwächung wirksam und bewirkt eine geringere y-Abhängigkeit. Hierbei beträgt die Abweichung zur Referenz etwa -4% bis 4%, wenn die Lunge um 1 Voxel vom Detektor weg bzw. hinbewegt wird.

#### 4.1.3 Lokale Deposition von Am-241 in hautnahen Gewebebereichen

B. Heide, M. Steinhoff

Befindet sich Am-241 in einem Punktpräparat, so erhält man bei der Messung mit Szintillationsdetektoren zwei Peaks: eine 17 keV - Linie und eine 60 keV - Linie.

Befindet sich Am-241 innerhalb des Körpers, so wird die 17 keV - Linie durch das Körpergewebe stark geschwächt, wohingegen die 60 keV - Linie verhältnismäßig nur leicht geschwächt wird. Abbildung 1 illustriert die Schwächung beider Linien, nachdem zwischen ein Am-241 - Punktpräparat und einen 8" - Phoswich-Detektor Scheiben aus Polyethylen (PE) unterschiedlicher (Schicht-) Dicke eingebracht wurden. Die vorliegenden Daten wurden mit dem Computer-Code MCNP5 ermittelt. Die Dichte der Scheiben betrug  $0,95 \text{ g/cm}^3$ . Da die Dichte mit der von Wasser vergleichbar ist, wurden die PE-Scheiben als gewebeäquivalentes Phantom betrachtet.

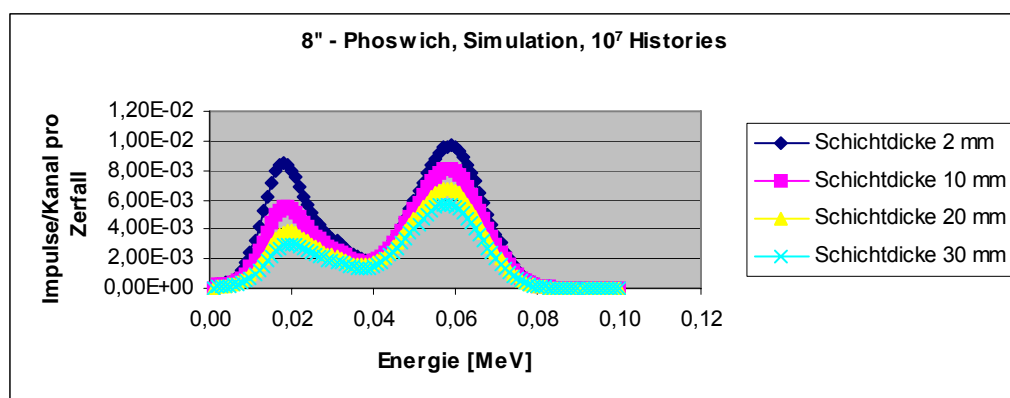


Abbildung 18: Simulation eines Szenarios, bei dem zwischen einem Am-241 - Punktstrahler und einem 8" - Phoswich-Detektor Polyethylenscheiben mit Schichtdicken zwischen 2 mm und 30 mm eingebracht wurden

Aufgrund der unterschiedlichen Schwächung der 17 keV - Linie und der 60 keV - Linie kann, falls sich die Aktivität nicht allzu tief im Körper (also im hautnahem Gewebereich) befindet, aus dem Verhältnis der Peakflächen der beiden Linien auf die Tiefe der Aktivitätsdeposition geschlossen werden.

Zur Lokalisierung einer begrenzten Aktivitätsdeposition eignet sich ein (kleiner) 0,8" - Phoswich-Detektor besser als ein (großer) 8" - Phoswich-Detektor. Aus diesem Grunde wurde ein Vorexperiment durchgeführt, bei dem das oben beschriebene Messszenario (vgl. Abbildung 18) mit einem Phoswich-Detektor durchgeführt wurde, der einen Durchmesser von 0,8" besaß. In Abbildung 19 ist das Ergebnis (siehe blaue Kurve) dargestellt.

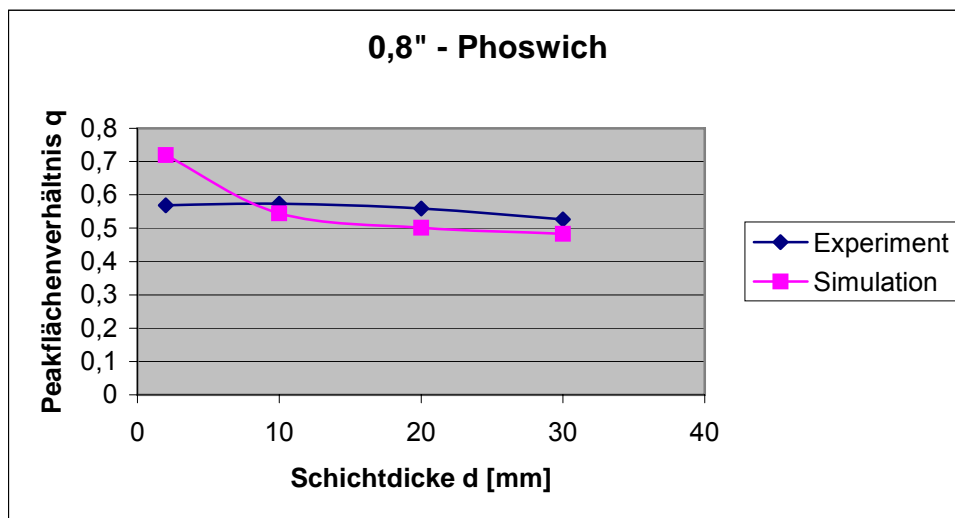


Abbildung 19: Messung und Simulation eines Szenarios, bei dem zwischen einen Am-241 - Punktstrahler und einen 0,8" - Phoswich-Detektor Polyethylenscheiben mit Schichtdicken zwischen 2 mm und 30 mm eingebracht wurden

Entgegen der Erwartung fiel die experimentelle (blaue) Kurve bzgl. geringer Schichtdicken (2 mm - 10 mm) nicht deutlich ab, sondern stieg leicht an.

Zur Klärung der Frage, warum das Peakflächenverhältnis bzgl. geringer Schichtdicken nicht deutlich abfällt, wurde das obige Messszenario mit einem 8" - Phoswich-Detektor durchgeführt und ferner mit dem Computer-Code MCNP5 simuliert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 20 dargestellt.

Anhand der experimentellen (blauen) Kurve von Abbildung 20 ist erkennbar, dass - zumindest hinsichtlich eines 8" - Phoswich-Detektors - das Peakflächenverhältnis bzgl. geringer Schichtdicken, wie erwartet, deutlich abfällt. Die simulierte (rote) Kurve von Abbildung 20 gleicht von der Form der experimentellen Kurve; zeigt also insbesondere denselben Abfall bei geringen Schichtdicken. Allerdings ist die simulierte Kurve etwas nach oben verschoben. Dies könnte durch eine unterschiedliche Normierung bewirkt worden sein. Der gleiche Kurvenverlauf von Experiment und Simulation deutet darauf hin, dass die Simulation das Experiment im wesentlichen richtig wiedergibt. Unter dieser Voraussetzung weist die Diskrepanz zwischen der experimentellen und der simulierten Kurve bzgl. des 0,8" - Phoswich-Detektors in Abbildung 19 darauf hin, dass die experimentelle Kurve von einem Artefakt überlagert ist.

Demnach sollte es möglich sein, auch mit einem 0,8" - Phoswich-Detektor die Tiefe einer begrenzten Am-241 - Deposition zu bestimmen.

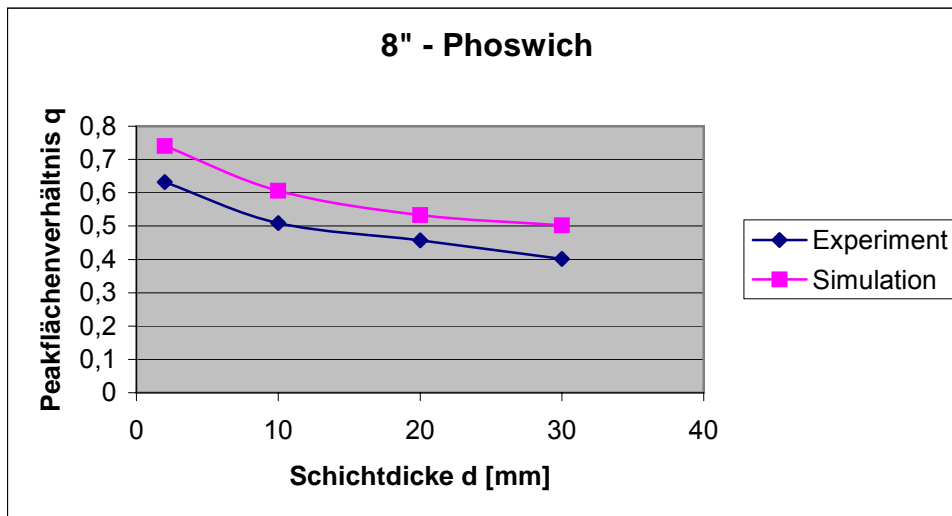


Abbildung 20: Messung und Simulation eines Szenarios, bei dem zwischen einem Am-241 - Punktstrahler und einem 8" - Phoswich-Detektor Polyethylenscheiben mit Schichtdicken zwischen 2 mm und 30 mm eingebracht wurden

Künftig soll der Einfluss von Cs-137, K-40, Co-60 und anderen Radionukliden als Störstrahler untersucht werden (auch im Hinblick auf die erreichbaren Nachweisgrenzen).

## 4.2 Biokinetik, Dosimetrie

### 4.2.1 Entwicklung biokinetischer Modelle zur Beschreibung der Wirkung von DTPA in Hinblick auf die Diagnostik und Therapie bei Inkorporationen von Plutonium und anderen Transuranen

B. Breustedt (HS), K. Zugenmaier (MED), E. Polig (HS), V. List (MED),  
M. Urban (HS),

gefördert durch das Umweltministerium Baden-Württemberg (BWPlus-Projekt)

Werden offene radioaktive Stoffe in den Körper aufgenommen, nehmen sie an den normalen Stoffwechselprozessen teil. Sie werden im Körper transportiert, lagern sich in Organen an und werden ausgeschieden. Die Aufnahme in den Körper erfolgt über die Atemwege (Inhalation), den Verdauungstrakt (Ingestion) oder durch kontaminierte Wunden (Invulnearation). In medizinischen Anwendungen wird die Aktivität auch direkt ins Blut gespritzt (Injektion). Der Transport im Körper erfolgt im wesentlichen über das Blutplasma und das extrazelluläre Wasser, die Ausscheidung über Urin und Stuhl. Andere Transportwege sowie die Exhalation und die Ausscheidung über Schweiß sind für die hier betrachteten Nuklide (Plutonium und Transurane) vernachlässigbar [ICRP98].

Zur Beschreibung des Stoffwechsels verschiedener Elemente und ihrer Verbindungen werden biokinetische Modelle im Kompartimentformalismus [Jaq96] verwendet. Der Körper wird dabei in Untereinheiten (Kompartimente) unterteilt. Das können Organgruppen (z. B. Weichteilgewebe), einzelne Organe (z. B. Gonaden) oder Organanteile (z. B. Knochenoberfläche) sein. Die Struktur des Modells beschreibt die möglichen Stoffwechselffade für den betrachteten Stoff. Die Rate, mit welcher der Transport des Stoffes zwischen den einzelnen Kompartimenten erfolgt, ist (bei angenommener linearer Kinetik) proportional zum Inhalt des abgehenden Kompartiments. Der Proportionalitätsfaktor wird Transferkoeffizient genannt. Die Abschätzung der aus einer Inkorporation resultierenden Strahlendosis ist nur über biokinetische Modelle möglich. Die ICRP veröffentlicht solche Modelle (d.h. Strukturen und Transferkoeffizienten) für verschiedene Nuklide [ICRP94, ICRP98]. Zusätzlich gibt es Kompartimentmodelle für den Atemtrakt [ICRP94a] und den Verdauungstrakt [ICRP79], die für alle Nuklide gleichermaßen gelten. Aktuell wurde eine Überarbeitung des systemischen Pu-Modells durch Legget et al. [Leg05] veröffentlicht.

Die in diesem Projekt betrachteten Nuklide (Plutonium und Transurane) reichern sich, nachdem sie im Blut gelöst sind, primär in den Knochen (ca. 50 % der aufgenommenen Aktivität) und der Leber (ca. 30 %) an. Die Anreicherung in den Gonaden bzw. anderen Weichteilgeweben ist geringer. Die Organaktivitäten können direkt (d. h. in Teilkörperzählern) nur schwer (z. B. Am-241 (60keV Gamma-Emission), Pu-239 nur durch Röntgennachweis) bzw. gar nicht ermittelt werden. Zur Dosisabschätzung müssen daher die ausgeschiedenen Aktivitäten betrachtet (Bioassay) werden. Der Verlauf der Ausscheidungskurve ist abhängig von der Art der Aufnahme, der chemischen Form und weiteren Parametern (z. B. Aerosol-Korngröße bei inhalierten Nukliden). Mit den biokinetischen Modellen können Erwartungskurven für die Ausscheidung von Plutonium nach einer Inkorporation berechnet werden. In der folgenden Abbildung sind die erwarteten Urinausscheidungen nach einer Plutoniuminkorporation für verschiedene Inkorporationspfade dargestellt. Aufgetragen wurde jeweils der Anteil des aufgenommenen Pu, der pro Tag im Urin ausgeschieden wird („percentage daily excretion“).

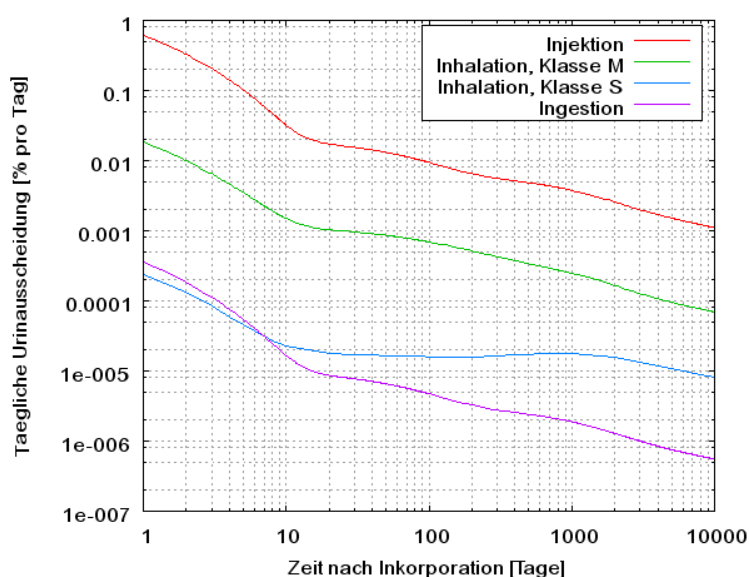


Abbildung 21: Berechnete Urinausscheidung für verschiedene Inkorporationspfade



---

Zur Berechnung der inkorporierten Aktivität und der daraus resultierenden Dosis werden in regelmäßigen Abständen Urin bzw. Stuhl jeweils über 24h gesammelt und nach radiochemischer Aufbereitung die darin enthaltene Aktivität bestimmt. An die so gemessenen Ausscheidungskurven werden durch Skalierung mit der aufgenommenen Aktivität die Modellkurven angepasst. Dabei können zusätzliche Informationen über die Inkorporationsumstände (z. B. Unfallhergang, verwendete Verbindungen) zur Auswahl des passenden Kurventyps herangezogen werden und die Ergebnisse mit eventuell weiteren vorhandenen Daten (z. B. Raumluftmessung) abgeglichen werden. Um eine belastbare Abschätzung der aufgenommenen Aktivität (Intake) zu erhalten muss der Ausscheidungsverlauf möglichst lange beobachtet werden. Dieses ist insbesondere bei nicht genau geklärten Inkorporationsumständen wichtig.

Dekorporationstherapie - Ausscheidungsintensivierung mit Diethylentriaminpentaacetat (DTPA) (in Zusammenarbeit mit der Medizinischen Abteilung MED des Forschungszentrums)

Ziel der Dekorporationstherapie mit DTPA ist es „die Strahlenbelastung durch eine Intensivierung der Radiometallausscheidung aus dem Körper zu erniedrigen. Diese Forderung ist noch dahingehend zu präzisieren, dass eine Reduktion der Radiometallkonzentration im kritischen Organ anzustreben ist.“ [Cat68] Die Beschleunigung der Radiometallausscheidung erfolgt durch eine chemische Komplexbildung des Metalls mit einer Verbindung, die schnell ausgeschieden wird. Verschiedene Liganden kommen hierfür in Frage. Im Blut bilden sich aber auch immer „stabile“ Komplexe mit Plasmaproteinen (z. B. Pu-Transferrin). Besonders stabile Komplexe bilden so genannte Chelatbildner (von griech. „chelos“ = Krebsschere). Diese besitzen mehrere Elektronendonatoratome (z. B. O, S, N), bzw. funktionelle Gruppen (z. B. -OH, -COO, -COONH, -N=N-, >C=N-OH) mit denen sie das Metallion umgeben und Wasser aus der Hydrathülle bzw. das Plasmaprotein verdrängen können. Die effektivsten Chelatbildner beinhalten mehrere Donoratome und funktionelle Gruppen, z. B. Polyaminopolycarboxylsäuren. Die Nützlichkeit eines Chelatbildners für die Dekorporationstherapie hängt von mehreren Faktoren ab [Vol78]:

- Wahrscheinlichkeit einen Chelatkomplex in-vivo bilden zu können (hängt ab von der Affinität des Chelators zum Metall und der Affinität des Metalls zu endogenen Rezeptoren)
- Physiko-Chemische Eigenschaften des Metalls, d. h. dem für die Chelation verfügbaren Anteil des Metalls im Körper
- Konzentrationsverhältnis von Chelatbildner zu chelierbarem Anteil des Metalls im Hinblick auf die Reaktionsgeschwindigkeit
- Metabolische Stabilität des Metallchelats und Ausscheidungsrate des Komplexes
- Biologisches Verhalten des Chelatbildners (zusätzliche Beeinflussung von Stoffwechselprozessen, Nebenwirkungen)

Für die Dekorporation von Plutonium und Transuranen zeigte sich Diethylentriaminpentaacetat (DTPA) als wichtigster Chelatbildner. Verwendet wird üblicherweise das Ca- oder Zn-Salz des DTPA. Die Wirkung von DTPA beschränkt sich aber auf den Extrazellulärraum, da auf Grund ihrer Ladungen und der hydrophilen Natur die Chelate Zellmembranen nicht durchdringen können [Vol78]. Daher sollte die Therapie so früh wie möglich begonnen werden, nämlich zu einem Zeitpunkt zu dem sich erst ein geringer Anteil des Radionuklids in den Or-

ganen befindet. Allerdings werden durch den Einfluss des DTPA die Ausscheidungsverläufe so verändert (s. u.), dass eine verlässliche Rückrechnung auf die Aktivität mit den bestehenden Modellen nicht mehr möglich ist.

In der Ausscheidungsrate ist im Urin für den Tag nach der DTPA-Gabe (im Stuhl versetzt um einige Tage) ein Überhöhung der Rate zu beobachten. Diese kann durch einen Überhöhungsfaktor (Excretion Enhancement Factor, EEF) beschrieben werden. Im Urin liegt dieser für  $^{239}\text{Pu}$  bei ca. 40-120, im Stuhl bei ca. 10. Interessant ist die Beobachtung, dass die Überhöhung der Ausscheidung des Transurans nach einer DTPA-Gabe auch über einige Tage hin zu beobachten ist, obwohl der größte Teil des applizierten DTPA bereits nach einem Tag ausgeschieden wurde (sog. „Nachklangeffekt“). Ein Erklärungsansatz für diesen Effekt geht davon aus, dass der Chelatkomplex zeitweise durch Bildung eines ternären Komplexes mit einem im Gewebe fixierten endogenen Liganden gebunden und dadurch verzögert ausgeschieden wird. Zusätzlich ist allerdings zu beachten, dass es durch das „Entleeren“ des Blutkompartiments durch DTPA zu einer Störung des Fließgleichgewichts kommt. Es muss also nach der DTPA-Gabe kurzzeitig auch von leicht geänderten Flussraten ausgegangen werden.

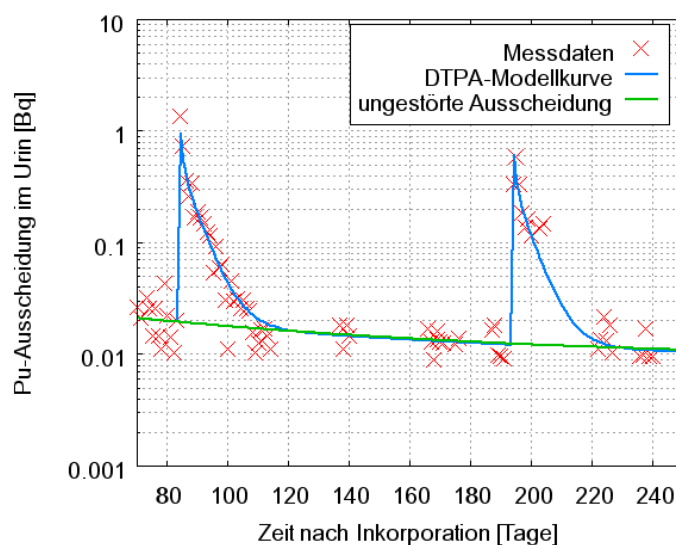


Abbildung 22: Zum „Nachklangeffekt“ der DTPA-Wirkung, die DTPA-Gaben erfolgten an den Tagen 83 und 193

Ziel des Projektes ist es, die bestehenden Modelle zu erweitern um auch die Beschreibung der durch DTPA-Gaben gestörten Urinausscheidung zu ermöglichen. Basierend auf diesen Modellen soll dann ein Verfahren zur Dosisdiagnostik von Pu-Inkorporationen unter dem Einfluss von DTPA sowie ein Verfahren zur Vorhersage der durch die DTPA-Therapie bewirkten Dosisreduktion bereitgestellt werden. Dazu wurden zunächst die im Forschungszentrum verteilt vorliegenden Informationen und Messdaten von Pu-Inkorporationsfällen mit und ohne DTPA-Therapie gesammelt und in einer zentralen Datenbank anonymisiert zusammengeführt. Bislang sind dort 169 Inkorporationsfälle erfasst.

## Empirische Beschreibung der Urinausscheidung unter DTPA-Wirkung

Um aus den Ausscheidungsdaten nach DTPA-Gaben, die aufgenommene Aktivität und die damit verbundene Dosis abzuschätzen und den Therapieerfolg bewerten zu können, wurde von Hall und Mitarbeitern 1978 ein empirisches Modell der DTPA-Wirkung aufgestellt [Hal78,LaB94]. Dabei wird von drei Grundannahmen ausgegangen:

Zum Zeitpunkt der DTPA-Gabe (oder in den folgenden 24h) steht von der gesamt aufgenommenen Aktivität ( $I$ ) eine Menge Plutonium ( $q$ ) zur Bildung eines Chelats zur Verfügung.

Der Pu-DTPA-Komplex ist stabil und wird mit seiner eigenen Ausscheidungsfunktion  $i_c(t)$  ausgeschieden. Üblicherweise wird ein exponentielles Abklingen angenommen.

Die Biokinetik des unchelierten Plutonium (beschrieben durch die Ausscheidungsfunktion  $i_u(t)$ ) verläuft ungestört weiter, allerdings mit einer um  $q$  reduzierten Aktivität).

Zusätzlich wird angenommen, dass die einzelnen DTPA-Gaben unabhängig voneinander wirken und jeweils einen Anteil  $q_i$  aus dem Blut entfernen. Der gesamte durch die Therapie entfernte Anteil ergibt sich durch Summation aller  $q_i$ .

Die erwartete Urinausscheidung  $e_u(t)$  kann dann beschrieben werden durch:

$$\text{vor einer DTPA-Gabe: } e_u(t) = I \cdot i_u(t)$$

$$\text{nach einer DTPA-Gabe: } \hat{e}_u(t) = (I - q) \cdot i_u(t) + q \cdot i_c(t)$$

$$\text{nach } n \text{ DTPA-Gaben: } \hat{e}_u(t) = (I - \sum_{i=1}^n q_i) \cdot i_u(t) + \sum_{i=1}^n (q_i \cdot i_c(t))$$

Für eine einzelne DTPA-Gabe am zweiten Tag nach der Inkorporation durch Inhalation erhält man (mit für die Darstellung übertriebenen Parameterwerten) Abbildung 23.

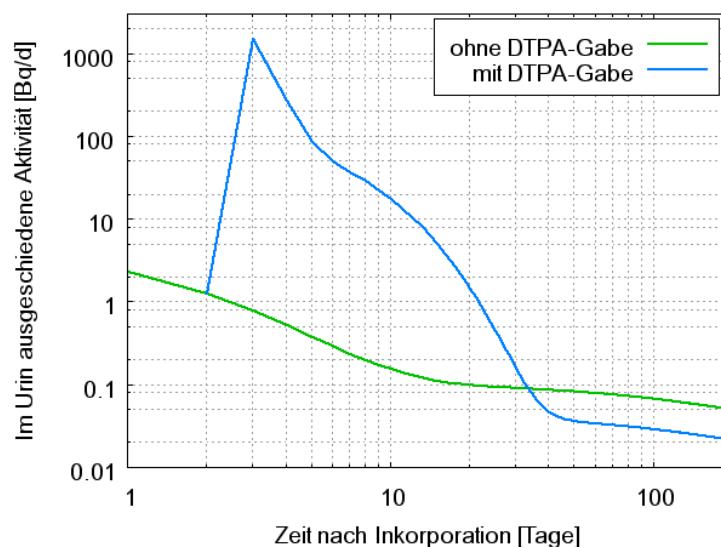


Abbildung 23: Erwartete Urinausscheidung nach einer DTPA-Gabe am zweiten Tag

Im Hall'schen Modell wird angenommen, dass sofort am Tag der DTPA-Gabe die Reduktion um den Anteil  $q$  erfolgt. Realistischerweise muss aber angenommen werden, dass die Reduktion nicht schlagartig sondern sukzessive erfolgt. Es wird daher in der Modifikation des Modells angenommen, dass die Reduktion  $\Delta Q(t, t_c)$  gerade dem Anteil von  $Q$ , der zum Zeitpunkt  $t$  ausgeschieden wurde, entspricht. Für die Ausscheidungsfunktion  $i_c(t, t_c)$  des Pu-Chelatkomplexes wird bei Hall auch eine Summe von zwei Exponentialfunktionen angesetzt.

$$i_c(t, t_c) = a_1 \cdot e^{-\lambda_1(t-t_c)} + a_2 \cdot e^{-\lambda_2(t-t_c)}$$

Durch eine Umformulierung des Modells können nun die Koeffizienten der Exponentialfunktion  $(a_1, \lambda_1, a_2, \lambda_2)$  und die ursprünglich aufgenommene Aktivität ( $I$ ) als Parameter für eine Anpassung der Modellkurve an die Messdaten verwendet werden. Aus Praxisgründen (die Datenlage ist in vielen Fällen sehr dünn) kann teilweise nur ein Exponentialterm in den Rechnungen verwendet werden. Aus den ermittelten Parametern kann dann für jede Chelation der Überhöhungsfaktor, die zusätzlich ausgeschiedene Menge  $q_i$  und die daraus resultierende Dosisreduktion berechnet werden. Zur Kontrolle kann der aus den Parametern berechnete Überhöhungsfaktor mit der gemessenen Überhöhung verglichen werden. Um das Modell anwenden zu können wurde ein C++-Programm entwickelt.

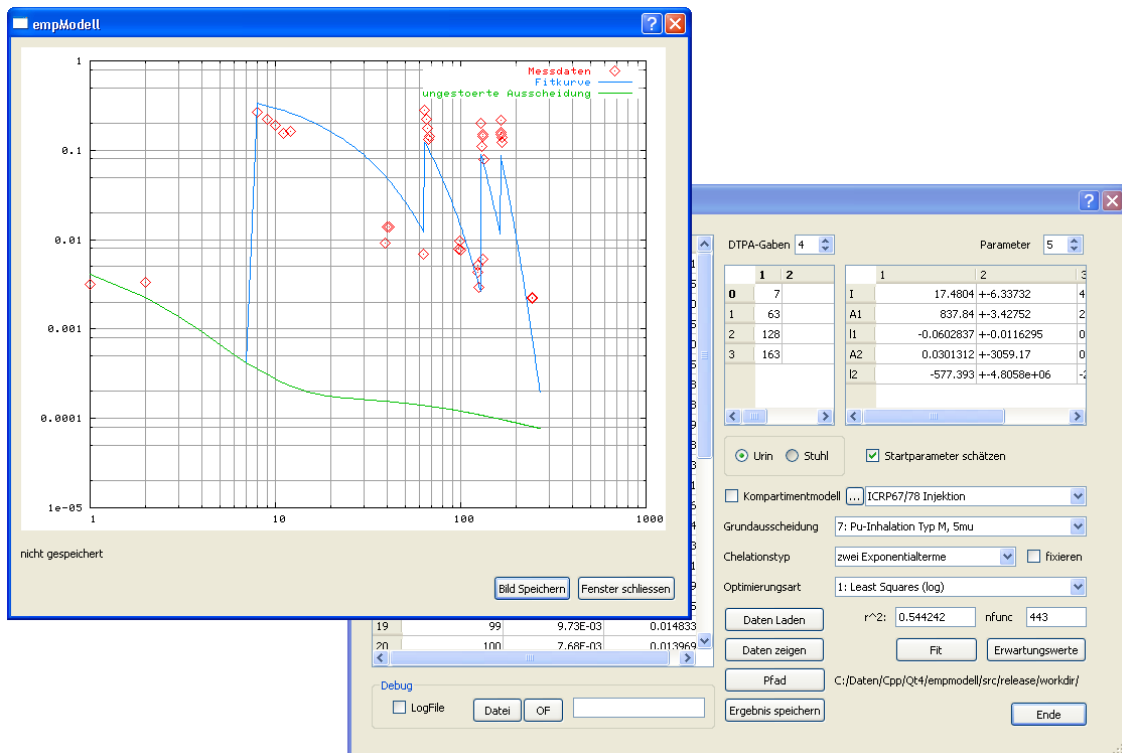


Abbildung 24: Programm zur empirischen Beschreibung der Urinausscheidung nach DTPA-Gaben

Die gemessenen Urinausscheidungsdaten, die Anzahl und die Tage der DTPA-Gaben können dort eingegeben, oder aus Textdateien geladen werden. Durch Optimierung (Simplex-Fit-Algorithmus) können die Parameter der Chelatfunktion  $i_c(t, t_c)$  und die initiale Aufnahme  $I$  an die Daten angepasst werden. Optional können die Parameter der Chelatfunktion fixiert und nur die aufgenommene Aktivität berechnet werden. Als Grundausscheidungsfunktionen

---

$i_u(t)$  werden die Lösungen eines Kompartimentmodells verwendet. Alternativ zur direkten Lösung des biokinetischen Modells stehen mehrere Ausscheidungskurven zur Auswahl. Die einzelnen numerisch gewonnenen Lösungen der jeweiligen biokinetischen Modelle wurden dazu durch Exponentialsummen beschrieben.

### Ausblick

Das entwickelte Programm wird zunächst mit synthetischen Daten getestet und validiert. Insbesondere der Einfluss der gewählten Grundausscheidung auf die berechneten Parameterwerte soll dabei untersucht werden. Das implementierte empirische Modell wird derzeit erweitert, um auch die Stuhldaten in der Auswertung berücksichtigen zu können.

Durch die Dekorporationstherapie wird nur das Plutonium im Blut bzw. im extrazellulären Wasser zusätzlich entfernt. Dadurch kommt es zu einer Störung des Fließgleichgewichts in der Pu-Biokinetik. Dieses wird im empirischen Modell nicht berücksichtigt, lediglich die Ausscheidungskurve wird beschrieben. In der biokinetischen Modellierung der DTPA-Wirkung muss dieses allerdings berücksichtigt werden. In einem ersten Schritt zu einem solchen Modell wird in einem vereinfachten Testmodell die Beeinflussung der Ausscheidungsraten durch den Pu-Rückfluss aus den Organen untersucht. Zur Beschreibung der DTPA-Wirkung wurden die Transferraten für den Zeitraum direkt nach der DTPA-Gabe modifiziert. In einem zweiten Schritt sollen zusätzliche Kompartimente für die DTPA-Komplexe im Modell ergänzt werden.

Parallel zur Programmentwicklung und den Studien mit den Kompartimentmodellen wird die, in der Datenbank zusammengetragene, Datenbasis durch weitere Sammlung von Daten zu Inkorporationsfällen erweitert.

## 4.2.2 Untersuchung der inter-individuellen Variation von biokinetischen Modellen

W. Klein, B. Breustedt, E. Polig

Bei der Dosimetrie inkorporierter radioaktiver Stoffe (interne Dosimetrie) spielen die zeitliche und räumliche Verteilung der Radionuklide im menschlichen Körper eine wichtige Rolle. Oft können sie aber nicht außerhalb des Körpers gemessen werden, da die Reichweite der emittierten Strahlung zu gering ist und sie schon innerhalb des Körpers wieder absorbiert wird. Messtechnisch zugänglich ist nur die Aktivität bzw. ihre Konzentration in den Ausscheidungen Stuhl und Urin. Man spricht in diesem Fall von einer Ausscheidungsanalyse. Um trotz der nur mittelbaren Informationen, die eine Ausscheidungsanalyse bietet, eine Dosisabschätzung vornehmen zu können, werden biokinetische Modelle verwendet. Diese Modelle vereinfachen den Menschen und seinen Stoffwechsel, indem sie ihn in mehrere biologisch sinnvolle, homogene Einheiten unterteilen, so genannte Kompartimente. Die Umverteilung der an den Stoffwechselprozessen teilnehmenden Stoffe zwischen den einzelnen Kompartimenten wird durch Übergangsraten beschrieben. Die Übergangsrate von einem in ein anderes Kompartiment ist proportional zum Inhalt des liefernden Kompartiments. Die Proportionalitätsfaktoren werden als Transferkoeffizienten bezeichnet. Die Transferkoeffizienten der in

---

internationalen Empfehlungen [ICRP94] verwendeten Modelle sind auf den Standardmenschen bezogene Mittelwerte und entsprechen nicht immer denen einer realen Person, deren Werte mitunter stark von den Werten des Standardmenschen abweichen können. Die Abschätzung der Strahlenexposition, die auf eine Inkorporation radioaktiver Stoffe zurückzuführen ist, ergibt somit nur einen „groben“ Schätzwert für die tatsächliche Dosis, da die im konkreten Einzelfall vorliegenden Transferkoeffizienten nicht bekannt sind und auch nicht ermittelt werden können. Abweichungen der wirklich vorliegenden Transferkoeffizienten von den jeweiligen des Standardmenschen haben jedoch unterschiedliche Effekte auf die mit Hilfe der Modelle ermittelte Dosis.

Daher wurde die Auswirkung der Abweichungen zwischen verschiedenen Personen und dem Standardmenschen untersucht (Diplomarbeit W. Klein, Universität Karlsruhe). Diese lässt sich nicht analytisch bestimmen, da Verteilungsfortpflanzungen schnell sehr kompliziert werden und nur für einfachste Modelle und Verteilungen berechenbar sind. Untersuchungen beliebiger Modelle lassen sich über Monte-Carlo-Simulationen durchführen. Aussagen über den Einfluss der Abweichungen einzelner Individuen vom Standardmenschen können mit Hilfe von Simulationen gemacht werden, bei denen jeweils ein Satz Transferkoeffizienten der eine Person repräsentiert, zufällig festgelegt wird. Dazu wird jeder einzelne Transferkoeffizient unabhängig von allen anderen verrauscht, so dass sich für die Transferkoeffizienten Rauschverteilungen bilden, deren Erwartungswert den Mittelwerten der verwendeten Modelle entspricht. Über die Lösung dieses individuellen Differentialgleichungssystems erhält man die Kompartimentinhalte der simulierten Person. Anhand der Kompartimentinhalte einer Person lässt sich die vermutete aufgenommene Aktivität berechnen, die wiederum zur Dosisabschätzung dient. Wird eine Vielzahl von Simulationen durchgeführt und deren Ergebnisse aufgezeichnet, so kann man Aussagen über die Verteilungen, Vertrauensbereiche und Unsicherheiten der erhaltenen Ergebnisse machen und so die Qualität des Schlusses vom Standardmodell auf ein Individuum beurteilen.

Einzelne Modellparameter lassen sich im menschlichen Körper nicht messen und stehen in ihrer Auswirkung teilweise für die Summe mehrerer Stoffwechselforgänge. Physiologische Parameter wie Blutdruck, Körpergröße, werden vom menschlichen Körper geregelt. Aus der Fachliteratur [ZHA94] geht hervor, dass sie auf Grund dieser Regelmechanismen lognormalverteilt sind. Man kann davon ausgehen, dass auch die Transferkoeffizienten, die in den biokinetischen Modellen Verwendung finden, dieser Verteilung folgen.

Um den Einfluss der Form der Transferkoeffizientenverteilung zu bestimmen, wurden die Auswirkungen unterschiedlicher Parameterverteilungen anhand der Beispiele: Gleich-, Dreieck-, Gauß- und Lognormalverteilung untersucht. Dazu wird jeder einzelne Transferkoeffizient eines Modells so verrauscht, dass er der jeweils vorgegebenen Verteilung und Streuung entspricht, aber unabhängig von allen anderen Transferkoeffizienten ist. Der Erwartungswert der Rauschverteilung entspricht dabei dem Wert des zu Grunde liegenden Modells. Bei geeigneter Wahl des Streumaßes lässt sich erkennen (Abbildung 25), dass sich die nach der Lösung des Modells entstehenden Verteilungen für alle vier zu Grunde liegenden Transferkoeffizientenverteilungen nur sehr geringfügig unterscheiden.

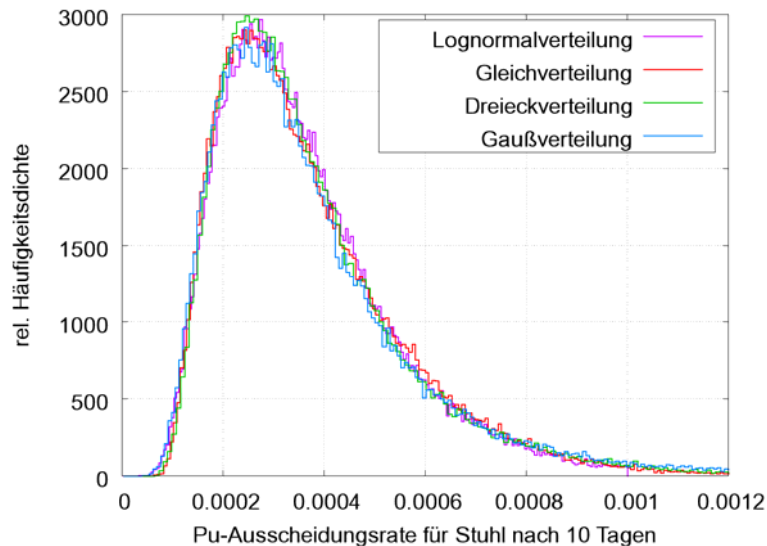


Abbildung 25: Simulation der Pu-Ausscheidungsrate im Stuhl nach 10 Tagen mit verschiedenen Parameterverteilungen

Die Verwendung von lognormalverteilten Parametern für die Simulation der inter-individuellen Variation ist deshalb begründet.

Zur Bestimmung der mittleren Transferkoeffizientenstreuung ist man auf einen Vergleich der Verteilungen von Messwerten aus realen Inkorporationsfällen mit den durch die Modelle berechneten Verteilungen angewiesen. Die in den Organen angereicherte Aktivität hängt von der insgesamt aufgenommenen Aktivität, die meist nur abgeschätzt werden kann, ab. Für eine Abschätzung der Parameterstreuung ist deshalb nur eine Betrachtung von Aktivitätsverhältnissen unterschiedlicher Organe bzw. unterschiedlicher Ausscheidungsprodukte sinnvoll. Außerdem schwankt die räumliche Verteilung im Körper kurz nach der Aufnahme der radioaktiven Substanz stark und wird durch die Art der Aufnahme: Inhalation (Atemwege), Ingestion (Verdauungstrakt), Invulneration (Wunde) beeinflusst. Erst nach ca. 1000 Tagen haben die im Körper stattfindenden Umverteilungen ein „stabiles“ Gleichgewicht gefunden, bei dem die Verteilung der im Körper verbliebenen Aktivität auf die einzelnen Organe nicht mehr von der Aufnahme bestimmt wird. Unterschiede bei der räumlichen Aktivitätsverteilung im Körper sind dann auf individuelle Unterschiede zurückzuführen. Verwertbar sind deshalb nur Daten von Personen, bei denen Messungen von mindestens zwei Organen oder Ausscheidungsprodukten lange nach der Aufnahme der Radioaktivität vorliegen. Auf Grund dieser Anforderungen an die Messdaten liegen sehr wenige Daten vor und es lässt sich nur eine grobe Abschätzung der durchschnittlichen Parameterstreuung vornehmen. Es existieren Daten für die Verhältnisse der Plutoniumausscheidungsrate Stuhl zu Urin und der Inhalte der Speicherorgane Skelett und Leber, die den genannten Anforderungen genügen. Die Wertepaare zur Plutoniumausscheidung stammen von ehemaligen MAYAK-Arbeitern<sup>1</sup> aus [KHO04]. Die Organwerte wurden aus der "U. S. Transuranium Registry" entnommen [KAT04]. Ein Vergleich der Standardabweichungen der beobachteten und simulierten Verhältnisse führt zu dem Ergebnis, dass ein Verrauschen aller Modellparameter mit einer

<sup>1</sup> Arbeiter des russischen Chemiekombinats in der [Oblast Tscheljabinsk](#) bei [Osjorsk](#)

---

Lognormalverteilung mit Variationskoeffizienten von ca. 60% zu ähnlichen Standardabweichungen der betrachteten Verhältnisse führt. Für die weiteren Untersuchungen wurden deshalb lognormalverteilte Transferkoeffizienten mit Variationskoeffizienten von 0,6 verwendet.

Monte-Carlo-Simulationen zum Einfluss der inter-individuellen Variation auf die Ausscheidung des inkorporierten Plutoniums mit dem Urin und Stuhl haben gezeigt, dass die Histogramme der Verteilung des Plutoniums in den beiden Endkompartimenten des Modells sowie in allen anderen Kompartimenten sich näherungsweise durch Lognormalverteilungen beschreiben lassen. Eine analytische Beschreibung dieser Verteilung ist aufgrund des komplexen nichtlinearen Systems, das für die Simulationen verwendet wurde, nicht möglich.

Die Lösung für die Beobachtungsgröße ist eine Summe von Exponentialtermen, bei der sowohl die Faktoren, mit denen ein Term in die Summe eingeht, als auch die Exponenten stochastisch verteilt sind.

$$x_i(t) = a \cdot e^{s_1 t} + b \cdot e^{s_2 t} + \dots$$

mit:

- a, b, ... sind statistisch verteilt
- $s_1, s_2, \dots$  sind statistisch verteilt

Die Verteilungen von a, b, ... und  $s_1, s_2, \dots$  hängen dabei von den Verteilungen der Transferkoeffizienten ab. Insgesamt überlagern sich die Verteilungen so, dass eine Abhängigkeit von der Form der Verteilung der Transferkoeffizienten nicht mehr zu erkennen ist.

Betrachtet man den zeitlichen Verlauf der Simulationen für die tägliche Ausscheidung von Plutonium mit dem Stuhl und Urin, erhält man folgende Ergebnisse:

- Der Erwartungswert der entstehenden Verteilungen für die Ausscheidung mit dem Urin liegt bis zum 30. Tag ständig leicht über dem Wert des unverrauschten Standardmodells. Besonders groß ist die Abweichung zwischen dem 6. und 30. Tag, so dass eine Berechnung der aufgenommenen Aktivität anhand von Messdaten aus diesem Zeitraum in der Regel zu einer Überschätzung führt.
- Bei der Plutoniumausscheidung mit dem Stuhl liegt der Erwartungswert der Simulation in den ersten drei Tagen unter dem Wert des Standardmodells, zwischen dem 4. und 40. Tag darüber.
- Der 95%-Vertrauensbereich ist für die Stuhl- und Urinausscheidung während des gesamten Zeitbereichs relativ breit, so liegen Werte, die sich um einen Faktor 10 unterscheiden, im Vertrauensband. Die Abschätzung der inkorporierten Aktivität über die Ausscheidungsanalyse ist demzufolge alleine auf Grund nicht messbarer individueller Unterschiede mit einem großen Fehler behaftet.



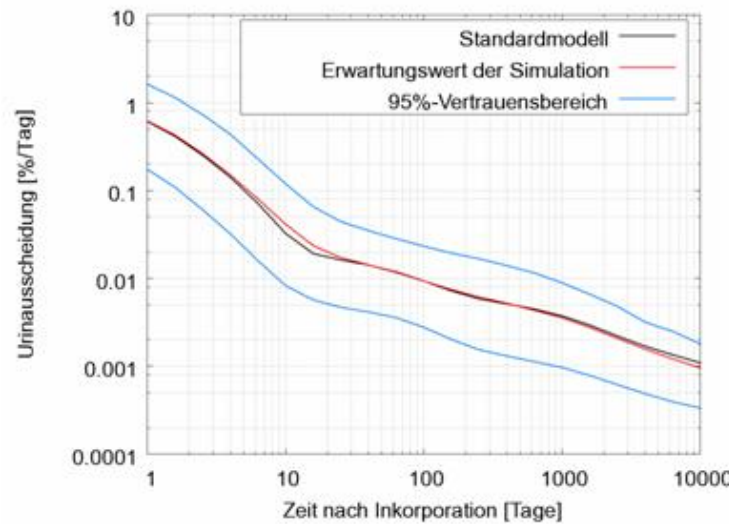


Abbildung 26: Zeitlicher Verlauf der Pu-Ausscheidung und des 95%-Vertrauensbereichs mit dem Urin

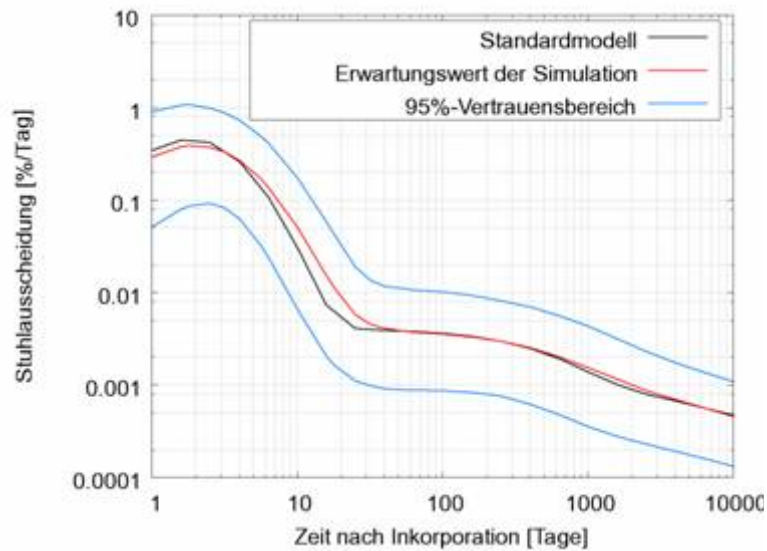


Abbildung 27: Zeitlicher Verlauf der Pu-Ausscheidung und des 95%-Vertrauensbereichs mit dem Stuhl

Ausblick:

Werden bei der Abschätzung der inkorporierten Aktivität die Abweichungen des Erwartungswerts vom Wert des Standardmodells, sowie die Unsicherheit der Werte zu unterschiedlichen Zeitpunkten berücksichtigt, lässt sich die Abschätzung der inkorporierten Aktivität deutlich verbessern. Möglich ist dies z. B. durch unterschiedliche Gewichtung der in die Berechnung eingehenden Werte. Der Einfluss einer Optimierung der Berechnung der aufgenommenen Aktivität auf die Unsicherheit des berechneten Werts, die durch inter-individuelle Variation entsteht, soll untersucht werden.

Im Allgemeinen ist nicht davon auszugehen, dass die individuelle Abweichung der Transferkoeffizienten unkorreliert ist. Deshalb soll untersucht werden, wie sich Korrelationen zwischen verschiedenen Transferkoeffizienten auswirken.

#### 4.2.3 Spätfolgen bei US Ziffernblattmalern nach der Aufnahme von Radium

E. Polig

In den USA wurden ca. 2500 ehemalige Ziffernblattmaler am Argonne National Laboratory und anderen Forschungsinstitutionen untersucht. Die Argonne Studie ist die umfangreichste Untersuchung der Spätfolgen im Menschen verursacht durch die Aufnahme von Radionukliden. Als Alphastrahler wurden die Radiumnuklide ( $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ) zu Referenznukliden für die Risikoabschätzung der ebenfalls alpha-strahlenden Aktinide.

Seit 1994 existiert eine publizierte Zusammenfassung aller Ergebnisse der Argonne Studie [Row94]. Sie enthält neben Ergebnissen auch eine vollständige Liste aller untersuchten Personen mit dazugehörigen epidemiologischen Daten (z. B. Alter, Beschäftigungszeit, Überlebensdauer, pathologischer Befund, aufgenommene Aktivität, kumulierte Strahlendosis etc.). Dadurch ist es zum ersten Mal möglich, das Datenmaterial auch nach anderen Gesichtspunkten und mit anderen Methoden zu analysieren, die von den Mitarbeitern des Argonne Projektes nicht in Erwägung gezogen wurden. Insbesondere erscheint es interessant, die Risikoanalyse in der gleichen Weise wie für Beagle Hunde durchzuführen [Pol03] und damit einen direkten Vergleich zwischen Mensch und Versuchstier zu ermöglichen.

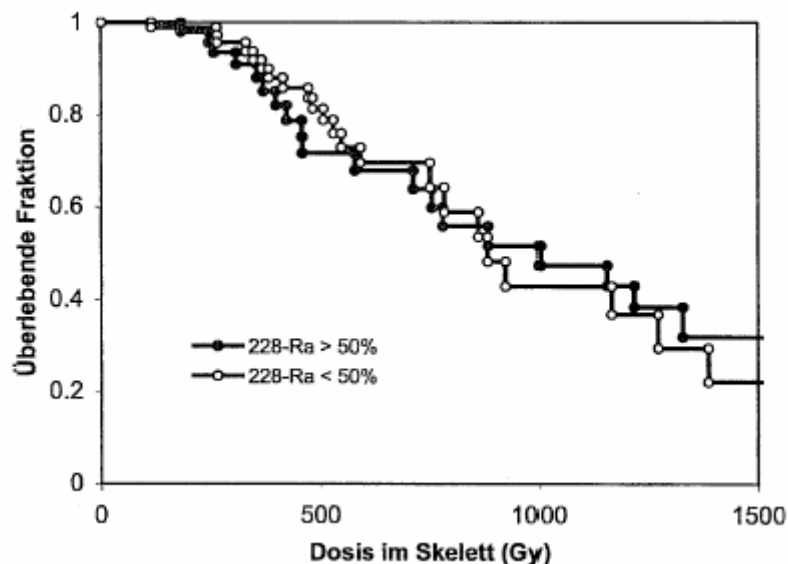


Abbildung 28: Kaplan-Meier Schätzung der Überlebensfunktion für Personen mit niedrigem und hohem  $^{228}\text{Ra}$  Anteil

Um eine möglichst homogene Ausgangsbasis zu haben wurden für die gegenwärtige Studie nur Ziffernblattmaler ausgewählt. Die Argonne-Studie enthält z. B. auch Chemiker und Laboranten, die Radium bei ihrer beruflichen Tätigkeit aufgenommen haben, oder Patienten, die Radiumpräparate aus medizinischen Gründen verordnet bekamen. Die hier ausgewählten Ziffernblattmaler waren weiblich und begannen ihre Tätigkeit in einem Durchschnittsalter von

19,6 Jahren. Aus den 1575 dokumentierten Fällen wurden 760 Personen mit den höchsten Aktivitätszufuhren ausgewählt. In diesem Personenkreis traten 46 Osteosarkome (Knochenkrebs) und 19 Karzinome (Krebs des Epithelgewebes) in den Nebenhöhlen des Kopfes auf. Die beobachteten Häufigkeiten liegen weit über den Erwartungswerten in einer unbestrahlten Population. Wegen der größeren Zahl der Fälle werden hier lediglich die Risiken für Knochenkrebs (Osteosarkom) betrachtet.

Die Lumineszenzfarbe wurde meistens durch Anspitzen der Pinsel mit Zunge und Lippen durch Ingestion aufgenommen. In der Regel bestand die Farbe aus einem Gemisch von  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Ra}$ , wobei die relativen Anteile stark variierten.  $^{228}\text{Ra}$  ist zwar ein  $\beta$ -Strahler, enthält in der Zerfallskette jedoch einige  $\alpha$ -Strahler. Die aufgenommenen Aktivitäten und die Strahlendosen im Skelett wurden deshalb getrennt für beide Isotope bestimmt. In diesem Zusammenhang stellt sich zunächst die Frage ob, bezogen auf die Strahlendosis im Skelett, beide Isotope gleich wirksam bei der Entstehung von Osteosarkomen sind. Eine Berechnung der Überlebenswahrscheinlichkeit als Funktion der kumulativen Strahlendosis nach Kaplan-Meier ist in Abbildung 28 dargestellt.

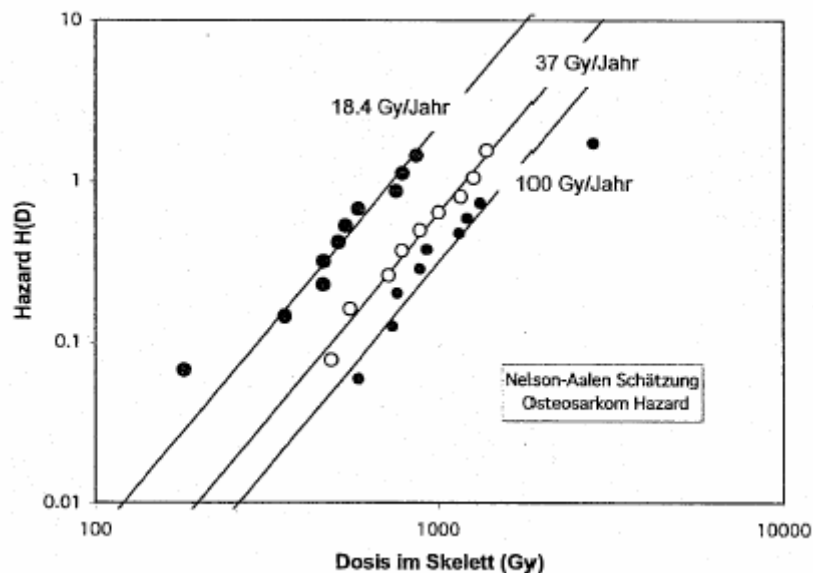


Abbildung 29: Schätzung der Hazard-Funktion für Osteosarkome im Skelett. Gruppierung nach mittlerer Dosisleistung

Dazu wurden alle Personen mit den höchsten mittleren Dosisleistungen bis hinunter zur geringsten Dosisleistung bei der noch ein Osteosarkom auftrat in zwei Gruppen eingeteilt. Bei einer Gruppe war der Beitrag von  $^{228}\text{Ra}$  zur Skelettdosis größer als 50% (53 Personen, Mittel: 80%), bei der anderen Gruppe kleiner als 50% (95 Personen, Mittel: 7.4%). Der Vergleich der beiden Überlebenskurven mit fünf verschiedenen Testverfahren ergab Wahrscheinlichkeiten zwischen 0.59 (Breslow-Gehan-Wilcoxon) und 0.99 (Mantel-Cox) dass die beobachteten Unterschiede zufällig und damit nicht signifikant sind. Für die weitere Analyse ist es deshalb möglich, nur die Summe beider Strahlendosen zu betrachten.

Das Risikomodell besteht, wie bei der Analyse der Beagle-Daten darin, einen empirischen Zusammenhang zwischen dem Hazard des betrachteten Spät-effektes (Osteosarkom) und der kumulativen Strahlendosis im Skelett zu finden. Die Methode unterscheidet sich von den

bisher in der Literatur dargestellten dadurch, dass sie die volle Information der Überlebensdaten ausnützt - z. B. auch die zeitliche Entwicklung der Spätfolgen - und keinerlei a priori-Annahmen über die Form der Dosis-Effektbeziehung macht (z. B. linear, linear-quadratisch etc.). Hazard  $H(D)$  ist definiert als der negative natürliche Logarithmus der Überlebenskurve  $S(D)$  ( $H(D) = -\ln S(D)$ ).

Wie bereits bei der Analyse der Beagle-Daten festgestellt wurde, muss mit einer Abhängigkeit der Hazardfunktion von der Dosisleistung gerechnet werden. Die Individuen wurden deshalb in fünf Gruppen mit mittleren Dosisleistungen von 4.3, 9.7, 18.4, 37 und 100 Gy/Jahr eingeteilt. Abbildung 29 zeigt die Hazardfunktion für die drei Gruppen mit den höchsten Dosisleistungen. Die Kurven können in doppelt-logarithmischem Maßstab gut durch Geraden approximiert werden. Das bedeutet, dass die Hazardfunktion einer Weibull-Verteilung entspricht.

$$H(D) = \lambda(\dot{D})D^\gamma \quad (1)$$

Der Parameter  $\gamma$  entspricht der Steigung. Er hat für alle Gruppen annähernd den gleichen Wert und wurde deshalb als  $\gamma = 2.55$  festgelegt. Der Skalierungsfaktor  $\lambda$  ist wie bei den Beagles abhängig von der Dosisleistung im Sinne einer Erhöhung des Hazards für gleiche Dosis aber geringerer Dosisleistung (inverser Dosisleistungseffekt). Der entscheidende Schritt bei der Extrapolation zu kleinen Dosen besteht darin, die Abhängigkeit des Skalierungsfaktors von der Dosisleistung empirisch durch eine möglichst einfache Funktion zu beschreiben, und diese dann mutig in den Bereich sehr kleiner Dosisleistungen fortzusetzen. Eine Regressionsanalyse ergab, dass, wie bei den Beagle-Hunden, der Skalierungsfaktor durch eine Potenzfunktion mit den angegebenen Parametern approximiert werden kann.

$$\lambda = \alpha \dot{D}^\beta ; \alpha = 2.14 \times 10^{-9} \quad \beta = -0.868 \quad r^2 = 0.893 \quad (2)$$

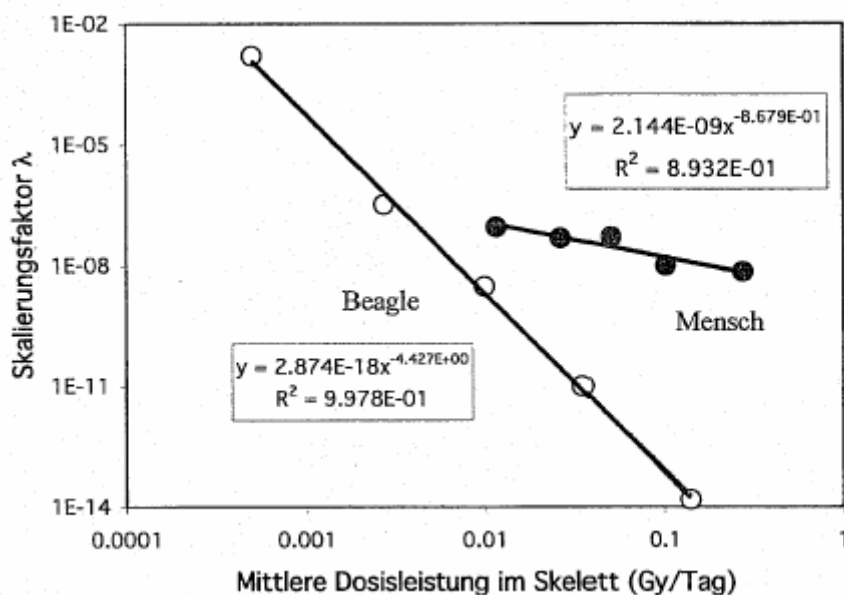


Abbildung 30: Skalierungsfaktor der Weibull-Verteilung für das Osteosarkom-Hazard in Abhängigkeit von der Dosisleistung. Vergleich Mensch-Beagle

Wie Abbildung 30 zeigt ist die Abhängigkeit des Skalierungsfaktors von der Dosisleistung beim Menschen geringer als beim Beagle. Der inverse Dosisleistungseffekt ist beim Menschen sehr viel weniger ausgeprägt als beim Beagle. Aus (1) und (2) ergeben sich nach einigen Umformungen

$$\begin{aligned} H(D, t) &= \alpha t^{-\beta} D^{\beta+\gamma} (t) \\ h(D, t) &= \alpha \gamma t^{-\beta-1} D^{\beta+\gamma} (t) \end{aligned} \quad (3)$$

$h$  ist die Hazard-Rate ( $h = dH/dt$ ).

Für die praktische Anwendung ist es vorteilhaft, die obigen Hazard-Funktionen nur in Abhängigkeit von der Zeit auszudrücken. Dazu ist die Zeitabhängigkeit der Dosis  $D(t)$  nötig:

$$D(t) = cA \int_0^t R_{skel}(\tau) d\tau ; c = \begin{cases} 2.18 \times 10^{-8} \text{ Gyd}^{-1} \text{ Bq}^{-1} & \text{weiblich} \\ 1.62 \times 10^{-8} \text{ Gyd}^{-1} \text{ Bq}^{-1} & \text{männlich} \end{cases} \quad (4)$$

$R_{skel}$  ist der Bruchteil der aufgenommenen Aktivität ( $A$ ) von  $^{226}\text{Ra}$  im Skelett. Der Faktor  $c$  ist unter der Annahme von 35%  $^{222}\text{Rn}$ -Retention berechnet. Er ist unterschiedlich für weibliche und männliche Individuen wegen der verschiedenen Skelettmassen ( 7,8 kg, 10,5 kg).

$R(t)$  ist im Allgemeinen eine Matrizenfunktion des zugrundeliegenden biokinetischen Systems und deshalb zu unhandlich und komplex für die numerische Integration. Es ist jedoch möglich, das obige Integral durch eine Summe von drei Exponentialtermen mit ausreichender Genauigkeit zu approximieren:

$$\int_0^t R_{skel}(\tau) d\tau = G(t) \approx \sum_{i=1}^3 a_i (1 - e^{-b_i t}) \quad (5)$$

Man kann zeigen, dass der Bruchteil der Individuen  $f_{bt}$ , die ein Osteosarkom entwickeln, sich mit

$$f_{bt}(t) = \int_0^t h(\tau) S(\tau) d\tau \quad (6)$$

abschätzen lässt. Dabei ist  $S(t)$  die Überlebenskurve, die alle anderen Lebensrisiken (natürliche und strahleninduzierte) erfasst. Es wird dabei angenommen, dass die Entstehung von Knochenkrebs und alle konkurrierenden Risiken im wahrscheinlichkeitstheoretischen Sinne unabhängig sind. Für praktisch relevante Aktivitätsmengen ( $A$ ) kann  $S(t)$  der Überlebenswahrscheinlichkeit  $S_c(t)$  für eine normale Population gleichgesetzt werden.  $S_c(t)$  für den Menschen wird durch die sogen. Gompertz-Makeham Funktion beschrieben:

$$S_c(t) = \exp\left(-\kappa t + \frac{\theta}{\mu}(1 - e^{\mu t})\right); \kappa = 0.00484; \theta = 4.72 \times 10^{-4}; \mu = 0.0925 \quad (7)$$

Frauen geboren 1910 in USA, 20 Jahre alt.

---

Die Gompertz-Makeham Funktion, die normalerweise für Neugeborene bestimmt wird, musste hier allerdings auf die Restlebensdauer für 20-jährige, entsprechend dem durchschnittlichen Alter der Ziffernblattmaler umgerechnet werden. Einsetzen von (3), (4) und (5) in (6) und Berücksichtigung von  $0 \leq S \leq S_c$  ergibt

$$f_{bt}(t) \leq \alpha \gamma c^{\beta+\gamma} A^{\beta+\gamma} \int_0^t \tau^{-\beta-1} G^{\beta+\gamma}(\tau) S_c(\tau) d\tau \quad (8)$$

Die maximale Fraktion mit Osteosarkomen ergibt sich nach  $t \rightarrow \infty$ . Für die praktische Berechnung reicht es jedoch aus, für die obere Grenze z. B.  $t = 100$  Jahre zu wählen. Auch ohne detaillierte Auswertung von (8) kann eine allgemeine Aussage zur Abhängigkeit des Effektes von der aufgenommenen Aktivität gemacht werden:

$$f_{bt} \propto A^{\beta+\gamma} ; \beta+\gamma=1.68 \quad (9)$$

Der Effekt ist mit einer Potenz von 1.68 von der aufgenommenen Aktivität abhängig. Diese Beziehung gilt für Aktivitäten die so klein sind, dass die Überlebenskurve der kontaminierten Population nicht wesentlich von der einer Kontrollpopulation abweicht ( $S \approx S_c$ ). Nur dann ist das obige Integral unabhängig von  $A$ .

Die Autoren der Argonne-Studie testeten linear-quadratische Dosis-Effekt Modelle und fanden dass eine quadratische Abhängigkeit am besten die damals (1982) verfügbaren Daten beschrieb. Für  $^{226}\text{Ra}$  in Beagles ergab sich die Potenz  $\beta+\gamma = 1.87$ . Möglicherweise sind die Werte für Mensch und Beagle statistisch nicht signifikant verschieden. Dies wird eine geplante genauere Untersuchung ergeben.

Das Risikomodell in (8) erlaubt sehr viel weitergehende Aussagen als die empirischen Modelle der Argonne-Studie, da damit auch das zeitliche Auftreten der Osteosarkome, Latenzzeiten usw. vorhergesagt werden können. Weiterhin ist es möglich, die Abhängigkeit des Effektes vom Alter der kontaminierten Person zu berechnen.

Die in der Argonne-Studie gewählten statistischen Methoden erfordern eine Gruppierung der Personen nach Klassen der aufgenommenen Aktivität oder Skelettdosis. Die Autoren selbst wiesen auf die Beeinflussung der Ergebnisse durch die gewählte Gruppierungsstrategie hin. Bei der Weiterführung der gegenwärtigen Studie ist deshalb geplant, eine Maximum-Likelihood-Methode zur Schätzung der Parameter anzuwenden, die keine Gruppierung der Individuen erfordert.

---

## 5 Natürliche Strahlenexposition, Strahlenexposition bei „Arbeiten“

### 5.1 Einführung eines Qualitätsmanagementsystems für das Radon-Messlabor des Forschungszentrums Karlsruhe

A. Eissler, B. Burgkhardt, F. Becker, S. Ugi

Zur Durchführung des vom Land Baden-Württemberg geförderten Projektes "Radonerhebungsmessungen in Wasserwerken in Baden-Württemberg" [BWPLUS] im Radonlabor der Hauptabteilung Sicherheit, ist nach der Richtlinie für die Überwachung der Strahlenexposition bei Arbeiten nach Teil 3 Kapitel 2 der StrlSchV [BMU03] der Nachweis der Eignung einer Messstelle zur Ermittlung der Radonexposition zu erbringen. Dies kann durch Vorlage einer Anerkennung von der „Leitstelle zur Überwachung der Umwelt auf natürliche Stoffe“ des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erfolgen. Dazu bedarf es jedoch eines einfachen aber wirksamen Qualitätsmanagementsystems (QMS). Das Anerkennungsverfahren orientiert sich dabei an den Anforderungen an Prüflaboratorien nach DIN EN ISO/ECE 17025 [DIN17025].

Im Rahmen einer Diplomarbeit (A. Eissler, Berufsakademie Karlsruhe) wurde die Entstehung des QMS umfassend begleitet und die so entstandene Struktur und der detaillierte Aufbau, einschließlich dem abschließenden Audit durch das BfS beschrieben [EISS06]. Unter der maßgeblichen Beteiligung des Diplomanden wurden die QM-Dokumente in Teamarbeit mit den Mitarbeitern des Radonlabors erstellt.

Einen Überblick über die im gesamten Prozess Radonmessung erstellten Dokumente gibt das Strukturdiagramm (Abbildung 31). Die rechteckigen Symbole stehen für Verzeichnisse und die Symbole mit den abgerundeten Ecken bezeichnen herausragende Dokumente des QMS. Die vertikale Symbolfolge zeigt die Gliederung in die fünf Verzeichnisebenen.

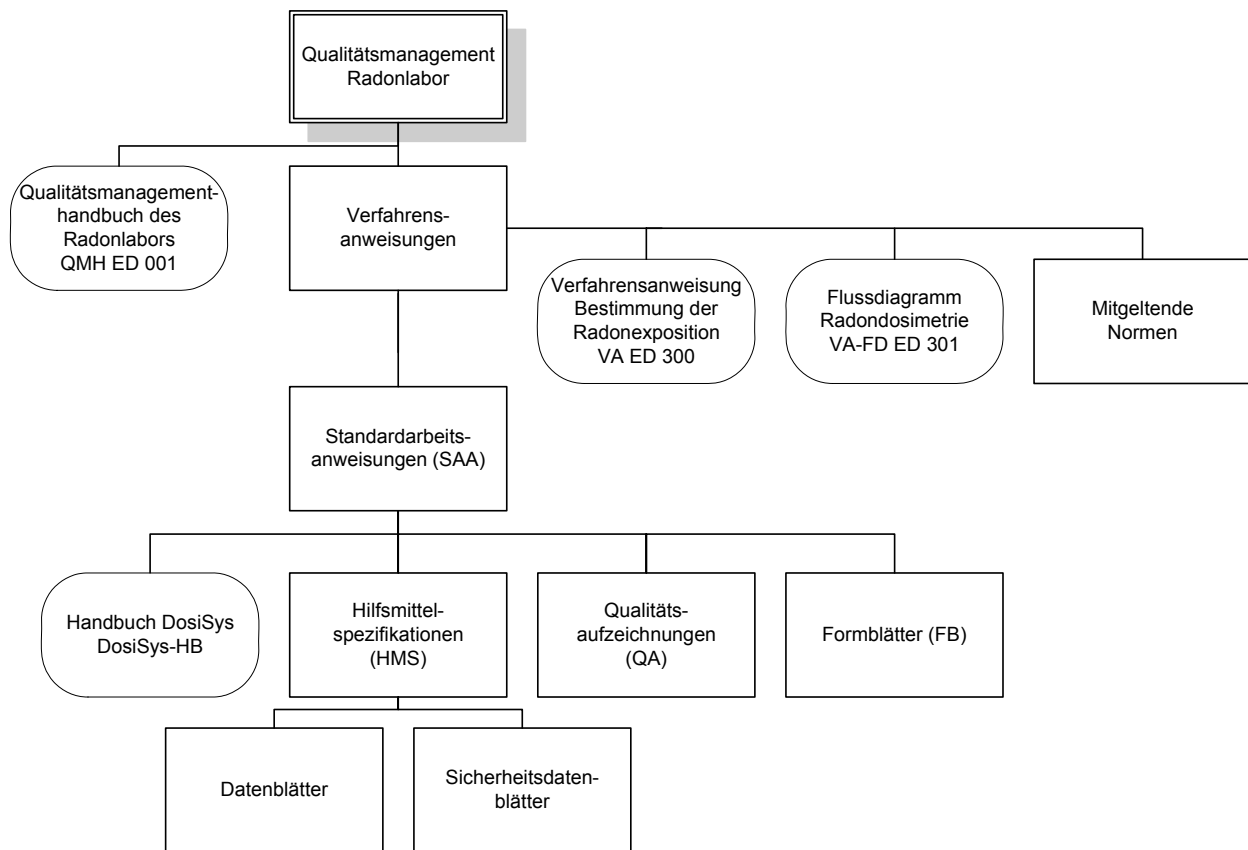


Abbildung 31: Strukturdiagramm des QMS des Radonlabors

In einem Qualitätsmanagement-Handbuch (QMH) wurde das übergeordnete Qualitätsziel der Radonlaborleitung, das Wesentliche über den Aufbau des Radonlabors, über die Prozesse, Verfahren und Abläufe, Qualitätssicherung, Qualifikation des Personals, die Ausstattung der Räumlichkeiten und die Lenkung der Dokumente zusammengestellt.

In der erstellten Verfahrensanweisung (VA ED 300) wurde der gesamte Prozess der Radondosimetrie in einem Prozessdiagramm dargestellt. Dieses Prozessdiagramm wird dem Benutzer zusätzlich als interaktives Flussdiagramm, welches direkt mit den Standardarbeitsanweisungen verlinkt ist, online zur Verfügung gestellt.

Standardarbeitsanweisungen (SAA) bilden die Grundlage der praktischen Arbeit in einem Qualitätsmanagementsystem. In 21 SAA wurden alle notwendigen Arbeitsschritte für den Prozess Radondosimetrie in einer einheitlichen Form beschrieben. Sie werden ergänzt durch siebenunddreißig Spezifikationen der eingesetzten Hilfsmittel (HMS). Sowohl für die SAA als auch für die HMS wurde ein allgemeines Dokument erstellt, welches die Gemeinsamkeiten des jeweiligen Dokumenttyps enthält, um ermüdende Wiederholungen in den Dokumenten zu vermeiden und andererseits den allgemeinen Charakter hervorzuheben.

Eine SQL-Datenbankanwendung (DosiSYS) dient dem Radon-Messverfahren insbesondere zur Kundenerfassung, Kundendatenpflege, Auftrags- und Lieferungsverwaltung, Verwaltung des Postausgangs und des Posteingangs, Dokumentation der Detektorproduktion, der Ätzung und der Spurenzählung und der Ergebniserstellung. Im Rahmen der Diplomarbeit wurde das Programm DosiSYS an die Forderungen des QMS angepasst. Zu DosiSYS wurde ein



---

Benutzerhandbuch (DosiSYS-HB) erstellt, das im Hinblick auf die Benutzerfreundlichkeit mit vielen detailliert erläuterten Screenshots versehen und übersichtlich in der Reihenfolge des Prozessablaufes aufgebaut wurde. Einzelne Kapitel des Handbuchs können durch Links in den SAA direkt von dort aufgerufen werden.

Weiterhin wurden 17 so genannte Qualitätsmanagementaufzeichnungen (QA) erstellt, die alle laufenden qualitätsrelevante Aufzeichnungen enthalten.

Mit dem Abschluss der Diplomarbeit konnte das Prüfungsaudit des Bundesamtes für Strahlenschutz mit Erfolg abgeschlossen werden.

## **5.2 Radonerhebungsmessungen in Wasserwerken in Baden-Württemberg**

S. Nagels, A. Eissler, F. Becker, B. Burgkhardt, S. Ugi, M. Urban

gefördert durch das Umweltministerium Baden-Württemberg (BWPlus-Projekt)

In Baden-Württemberg werden derzeit ca. 350 Wasserwerke mit ca. 3.500 Trinkwassergewinnungsstellen betrieben. Aus Voruntersuchungen ist bekannt, dass auch in Baden-Württemberg Anlagen existieren, deren Mitarbeiter erhöhten Strahlenexpositionen durch Radon ausgesetzt sein können. Dabei wurde deutlich, dass es auch keine verlässlichen Anhaltspunkte für eine Prognose z. B. aufgrund des jeweils vorherrschenden Untergrunds oder der Wassergewinnung aus Quellen oder Tiefbrunnen gibt. Ende 2005 wurde ein 18-monatiges Vorhaben begonnen, um möglichst flächendeckend Betreiber von Wasserwerken in Baden-Württemberg zu informieren, in Form von arbeitsbegleitenden Messungen einen Überblick über die tatsächliche Strahlenexposition von Mitarbeitern zu gewinnen und, sofern erforderlich und möglich, Vorschläge für einfache aber wirkungsvolle Maßnahmen zur Reduzierung der Strahlenexposition zu machen.

Im ersten Schritt des Projekts wurde den Wasserwerken Informationen und ein Anmeldeformular zur Teilnahme am Projekt „Radonerhebungsmessungen in Wasserwerken in Baden-Württemberg“ zugesendet. Auf verschiedenen Informationsveranstaltungen von Wasserversorgern wurden Einführungsvorträge zum Projekt gehalten und den „Wasserwerkern“ dadurch die Problematik der beruflichen Strahlenbelastung durch Radon näher gebracht. Im April 2005 fand am Forschungszentrum Karlsruhe eine große Auftaktinformationsveranstaltung statt, an der über 50 Angestellte aus Wasserversorgungsunternehmen teilnahmen. Durch weitere Informationsveranstaltungen und die Mithilfe des Städte- und Gemeindetags des Landes Baden-Württemberg wurden bisher insgesamt 280 Wasserversorgungsunternehmen erreicht.

Allen Teilnehmern wurde empfohlen, Messungen an Orten sowie personengebundene Messungen durchzuführen.

Die Wasserversorgungsunternehmen wählen die Mitarbeiter der Wasserwerksanlage aus, bei denen auf Grund ihrer routinemäßigen Arbeiten eine höhere Radonexposition zu erwarten ist und die deshalb ein Radonexposimeter tragen sollten. Dabei können Personen mit

vergleichbaren Arbeiten zusammengefasst werden, dann trägt repräsentativ für diese Personengruppe nur eine Person das Radonexposimeter. Jedes Personenexposimeter besitzt ein zugehöriges Referenzexposimeter, das an Orten mit geringer Radonkonzentration gelagert werden soll. An diesem Ort wird das Personenexposimeter außerhalb der Arbeitszeit gelagert. Die Konzentration des Referenzortes wird bei der Auswertung des personengebundenen Exposimeters berücksichtigt. Die personengebundenen Exposimeter werden für mindestens drei Monate von den ausgewählten Personen bei Arbeiten im Wasserwerk getragen.

In jedem Hochbehälter-Kammerraum und jedem Aufbereitungsgebäude, also überall dort, wo eine erhöhte Radonkonzentration nicht ausgeschlossen werden kann, sollte ein ortsgebundenes Radonexposimeter positioniert werden. Die ortsgebundenen Exposimeter werden für maximal zwei Wochen ausgelegt.

Bisher gewonnene Ergebnisse von 256 Messorten an 60 Wasserwerken zeigen, dass erhöhte Konzentrationen von Radon und seinen kurzlebigen Folgeprodukten an Arbeitsplätzen in Wasserwerken auftreten und damit das dort beschäftigte Personal einer Strahlenexposition über dem Jahres-Eingriffswert ausgesetzt werden kann (Abbildung 32). Wenn die Abschätzung der aus der Radonexposition ermittelten effektiven Dosis ergibt, dass diese für im Wasserwerk beschäftigtes Personal mehr als 6 Millisievert (mSv) im Kalenderjahr beträgt, sind weitere Maßnahmen zu ergreifen. So ist u. a. die Radonexposition der betroffenen Mitarbeiter dauerhaft zu ermitteln, um die Einhaltung des Jahresgrenzwerts der effektiven Dosis für beruflich strahlenexponierte Personen von 20 mSv sicherstellen zu können.

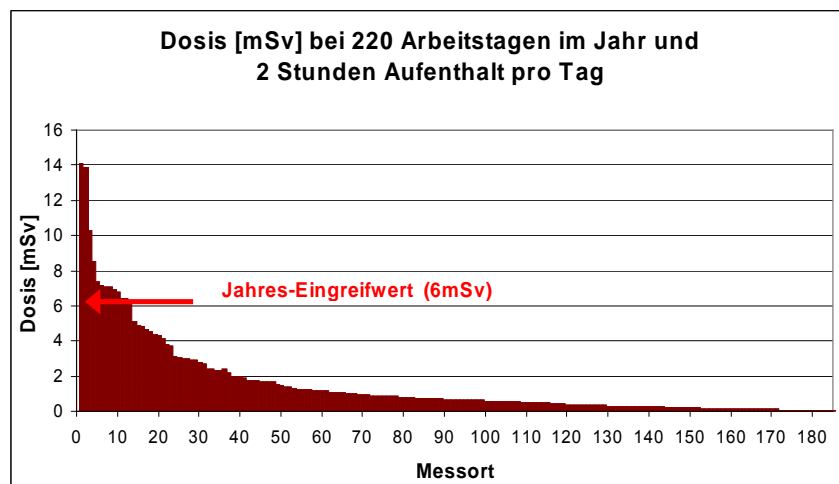


Abbildung 32: Aus der Exposition berechnete Dosis bei einer täglichen Arbeitszeit von 2 Stunden. Es werden 220 Arbeitstage pro Jahr angenommen

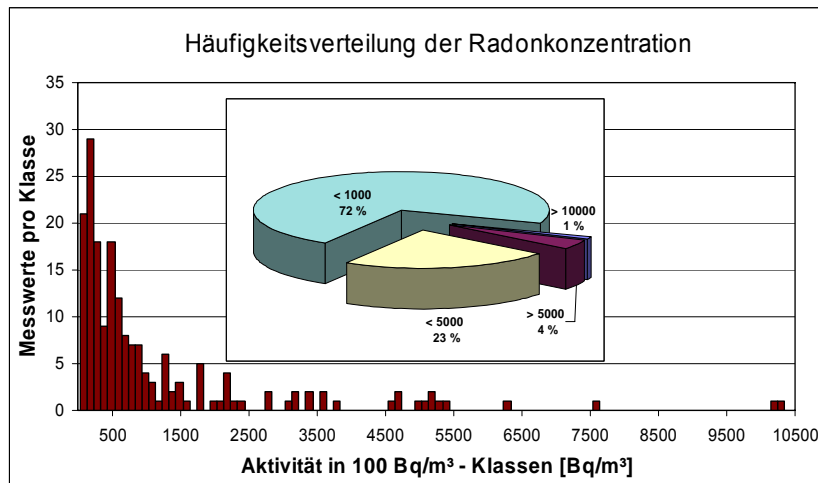


Abbildung 33: Häufigkeitsverteilung der Radonkonzentration

Abbildung 33 zeigt die Häufigkeitsverteilung der Radonkonzentration der ersten Messungen. Das eingefügte Kuchendiagramm veranschaulicht, dass rund 72 % der Messwerte unter 1000 Bq/m<sup>3</sup>, rund 23 % zwischen 1000 und 5000 Bq/m<sup>3</sup> und 4 % zwischen 5000 und 10000 Bq/m<sup>3</sup> liegen. Bei 1 % der Messwerte wurde eine Radonkonzentration von über 10000 Bq/m<sup>3</sup> festgestellt.

Die Expositionszeiten der ersten personengebundenen Exposimeter enden zum Zeitpunkt dieses Berichts, daher liegen von personengebundenen Exposimetern noch keine Ergebnisse vor.

Bisher wurden an 117 Wasserversorger ca. 680 Ortsexposimeter und 140 personengebundene Exposimeter ausgegeben.

Im zweiten Schritt des Projektes sollen an Anlagen, bei denen erhöhte Radonkonzentrationen auftreten, durch Aktivmessungen eine genauere Lokalisierung der erhöhten Konzentrationen durchgeführt werden. Gemeinsam mit den Betreibern werden dann einfache und kostengünstige Lösungen zur Verringerung der Radonkonzentrationen erarbeitet.

Die systematische und vergleichbare Erhebung wird nach Abschluss des ersten Schrittes des Projektes flächendeckend durchgeführt sein.

---

## 6 Literatur

- [Ale90] Alexander, W.R.; Shimmield, T.M.: "Microwave oven dissolution of geological samples. Novel application in the determination of natural decay series radionuclides" J. of Radioanalyt. And Nuc. Chem., Vol. 145, No 4 (1990) p.301-310
- [BMU03] BMU, *Durchführung der Strahlenschutzverordnung – Richtlinie für die Überwachung der Strahlenexposition bei Arbeiten nach Teil 3 Kapitel 2 Strahlenschutzverordnung*, GMBI, S. 418-431., 2004
- [Bri00] Briesmeister, J. F. (ed.): MCNP - A General Monte Carlo Code N-Particle Transport Code. Los Alamos National Laboratory Report LA-13709-M, Los Alamos, New Mexico (2000).
- [Bur06] Bertram Burgkhardt et al.: "Application of different TL detectors for the photon dosimetry in mixed radiation fields used for BNCT", radiation protection dosimetry, doi:10.1093/rpd/nci597, Radiation Protection Dosimetry Advance Access published online on April 27, 2006
- [BWPLUS] <http://www.fzk-radon.de>
- [Cat68] Catsch A, *Dekorporierung radioaktiver und stabiler Metallionen – Therapeutische Grundlagen*. Thiemig, München , 1968
- [DIN17025] DIN EN ISO/IEC 17025, *Allgemeine Anforderungen an die Kompetenz von Prüf- und Kalibrierlaboratorien (ISO/IEC 17025:2005)*; August 2005
- [Doe06\_1] Doerfel, H., Heide, B., Sohlin, M.: Entwicklung eines Verfahrens zur numerischen Kalibrierung von Teilkörperzählern. Wissenschaftlicher Bericht FZKA 7238, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe 2006.
- [Doe06\_2] Doerfel, H., Heide, B.: Calibration of a Phoswich Type Partial-Body Counter by Monte-Carlo Simulation of Low Energy Photon Transport. Submitted to Radiation Protection Dosimetry (RPD), RPD-06-0120, (2006)
- [Dul01] Dulaiova, H. et al.: "Separation and Analysis of Am and Pu from Large Soil and Sediment Samples" Radioact. and Radiochem. (2001) v. 12(3) p. 4-15
- [Eiss06] A. Eissler, *Einführung eines Qualitätsmanagementsystems für das Radon-Messlabor des Forschungszentrums Karlsruhe*, Diplomarbeit, Hauptabteilung Sicherheit; Forschungszentrum Karlsruhe; September 2006
- [Hal78] Hall RM et al., *A Mathematical Model for Estimation of Plutonium in the human Body from urine Data influenced by DTPA Therapy*, Health Physics, 34, 419-431, 1978.

- 
- [Her06] Anke Herzenstiel; "Optimierung der Energiekompensationsfilters und Verbesserung des Messverfahrens für TLD-300"; Projektarbeit, September 2006
- [Hor93] Horwitz, E.P. et al.: "Separation and Preconcentration of Actinoids from Acidic Media by Extraction Chromatography" *Anal. Chim. Acta* 281 (1993) p. 361-372
- [Hor95] Horwitz, E.P. et al.: "Separation and preconcentration of actinoids by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application to the characterization of high-level nuclear waste solutions" *Anal. Chim. Acta* 310 (1995) p. 63-78
- [ICRP79] ICRP, *Limits on Intakes of Radionuclides by Workers*, ICRP Publication 30, Pergamon Press, Oxford, 1979.
- [ICRP94] ICRP, *Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 2*, ICRP Publication 67, Pergamon Press, Oxford 1994
- [ICRP94] ICRP, *Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 2*, ICRP Publication 67, Pergamon Press, Oxford 1994.
- [ICRP94a] ICRP, *Human Respiratory Tract Model for Radiation Protection*, ICRP Publication 66, Pergamon Press, Oxford 1994.
- [ICRP98] ICRP, *Individual Monitoring for Internal Exposure of Workers*, ICRP Publication 78, Pergamon Press, Oxford 1998.
- [Jac96] Jacquez JA, *Compartmental Analysis in Biology and Medicine*, BioMedware, Ann Arbor, 1996.
- [KAT88] R. L. KATHREN, R.L. et al., *Partitioning of  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in skeleton and liver of u.s. transuranium registry autopsy cases*. *Health Physics*, 54:181–188, 1988
- [KHO04] KHOKHRYAKOV, V. F. et al., *Relative Role of Plutonium Excretion with Urine and Feces from Human Body*, Volume 86. Pergamon Press, Oxford, 2004
- [Kin88] Kingston, H.M.; Jassie, L.B.: "Introduction to Microwave Sample Preparation" ACS Books, publ. by American Chemical Society, ISBN 0-8412-1450-6, publ. 1988
- [Kre05] Christopher Krey; "Kalibrierung verschiedener TLD-Arten in der Messgröße Energiedosis in Wasser durch Photonen"; Studienarbeit, Juli 2005 und  
Christopher Krey; "Messung des Anteils der Energiedosis in Wasser durch Photonen mit TLD in Neutronen-Strahlungsfeldern für die Bor-Neutroneneinfang-Therapie"; Diplomarbeit, September 2005

- 
- [LaB94] LaBone TR, *Evaluation of Intakes of Transuranics influenced by Chelation Therapy*, In *Internal Radiation Dosimetry* (Ed. Raabe OG), 461-476, Medical Physics Publishing, Madison, 1994.
- [Leg05] Legget RW et al., *Mayak Worker Study: An Improved Biokinetic Model for Reconstructing Doses from Internally Deposited Plutonium*, *Radiation Research* 164, 111-122, 2005.
- [Mar98] Martin J.P.; Odell, K.J.: "The development of emergency radioanalytical techniques for the determination of radiostrontium and transuranic radioisotopes in environmental materials" *Radioact. and Radiochem.* (1998) v. 9(3) p. 49-60
- [Max97] Maxwell, S.L. "Rapid Actinoid-Separation Methods" *Radioact. and Radiochem.* (1997) v. 8(4) p. 36-44
- [Mih99] Mihai, S.A.; Georgescu, I.I.; Hurtgen, Ch.: "Artificial radioactive contamination of sediments along the Romanian sector of the Danube river and the Black Sea coast" *J. of Radioanalyt. And Nuc. Chem.*, Vol. 242, No 3 (1999) p.683-686
- [Pel05] Pelowitz, D. B. (ed.): *MCNPX User's Manual*. Los Alamos National Laboratory Report LA-CP-05-0369, Version 2.5.0, Los Alamos, New Mexico (2005).
- [Pil00] Pilviö, R.; Bickel, M.: "Actinoid separations by extraction chromatography" *Applied Radiation and Isotopes* 53 (2000) p. 273-277
- [Pol03] E. Polig, Risiken der Spätfolgen nach der Aufnahme von <sup>226</sup>Ra in Beagle Hunden, in *Urban M. Jahresbericht der Hauptabteilung Sicherheit*, FZKA 6830, 2003
- [Roi95] Roig, M.; Ribera, M.M.; Rauret, G.: "Application of microwave oven to the pre-treatment of macrosamples in environmental radioactivity monitoring" *J. of Radioanalyt. And Nuc. Chem.*, Vol. 190, No 1 (1995) p. 59-69
- [Row94] R. E. Rowland: *Radium in Humans. A review of U. S. studies*. Argonne National Laboratory, Environmental Research Division, September 1994
- [Sac97] Sachse, F. B., Werner, C., Müller, M., Meyer-Waarden, K.: *MEETMan - Models for Simulation of Electromagnetic, Elastomechanik and Thermic Behaviour of Man*, Erstellung und technische Parameter. Institut für Biomedizinische Technik, Technische Universität Karlsruhe, Karlsruhe 1997.
- [Vol78] Volf V, *Treatment of incorporated transuranium elements*, IAEA Technical Reports Series No .184, International Atomic Energy Agency, Wien 1978.

- 
- [ZHA94] ZHANG, C-L. and POPP, F-A., *Log-normal distribution of physiological parameters and the coherence of biological systems*. *Medical Hypotheses*, 43: 11–16, 1994