

Entwicklung radioanalytischer Methoden zur Inkorporationsüberwachung von Tm-170

A. Dieter, D. Noßke, U. Gerstmann

Bundesamt für Strahlenschutz

12.11.2012



Gliederung

- **Motivation**
- **Thulium-170**
- **Messgeräte und Messmethoden**
 - **Liquid Scintillation Counter**
 - **Ionenaustauscharze**
 - **Anreicherung und Liquid Scintillation Counting (LSC) -> in vitro**
 - **Gammastrahlungsmessung -> in vivo**
- **Zusammenfassung**



Motivation

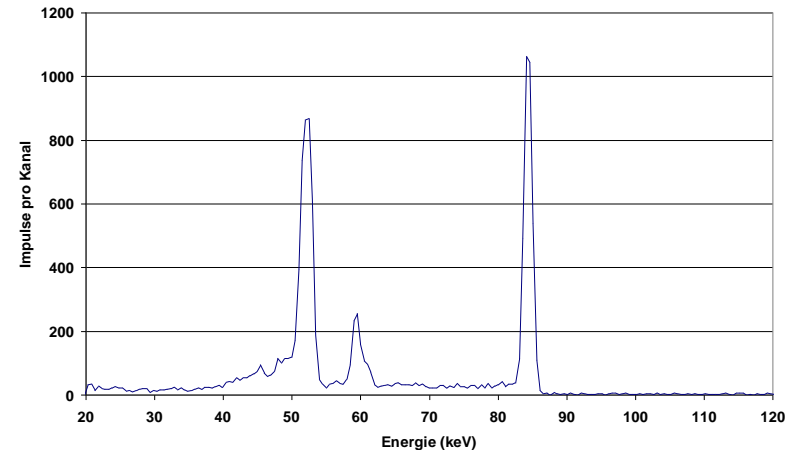
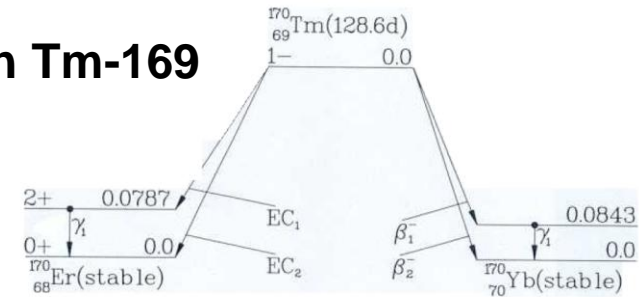
- **Entwicklung einer Methode, die im Ernstfall erlaubt, inkorporierte Aktivität schnell und zuverlässig zu Quantifizieren**
- **Abschätzung der effektiven Folgedosis auf 50 Jahre**

- **Herausforderung: geringe Konzentration des Radionuklids in den Ausscheidungsprodukten**



Thulium-170

- Lanthanoid [Xe] $4f^{13} 6s^2$
- Herstellung durch Neutronenaktivierung von Tm-169
- $T_{1/2} = 128,6 \text{ d}$
- β^- - Zerfall (99,9%) zu Yb-170 (stabil)
- β_1 : $E_{\text{max}} = 883,7 \text{ keV}$ (18,3 %) $E_0 = 290,5 \text{ keV}$
- β_2 : $E_{\text{max}} = 968,0 \text{ keV}$ (81,6 %) $E_0 = 323,1 \text{ keV}$
- γ : 84,3 keV (2,48 %)
- Anwendung: Werkstoffprüfung, Brachytherapie,...



Messgeräte

— Perkin Elmer Wallac Quantulus 1220

- **Ultra Low Level**
 - Passive Abschirmung: Bleiummantelung
 - Aktive Abschirmung: Scintillationscocktail + zwei Photomultiplier
- **Zwei Photomultiplier**
- **Eu-152**
- **SQP(E) (oberster Kanal des Fensters, das 99% der Gesamtpulse des Comptonspektrums der externen Quelle beinhaltet)**



— Hidex 300 SL

- **Drei Photomultiplier**
- **TDCR -> reine β -Strahler: Efficiency ~ TDCR-Wert**
- **Externe Quelle: Eu-152**
- **QPE (oberster Kanal des Fensters, das 99% der Gesamtpulse, entstanden durch externe Quelle, beinhaltet)**



— Tricarb

- **Super Low Level**
 - **BGO-Detektor (Bismuth-Germanium-Oxid): vergrößert Unterschied zu Untergrund**
- **Zwei Photomultiplier**
- **Höchster FOM-Wert überhaupt**
- **Bis zu 408 Proben**

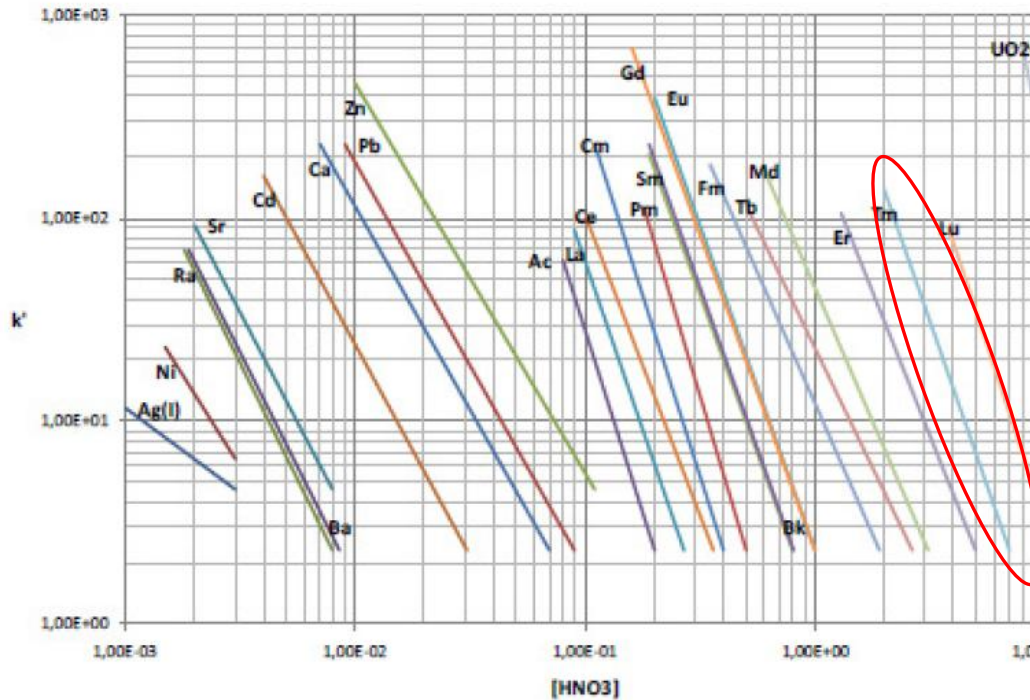
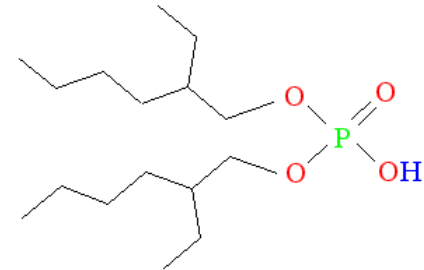


Messmethoden – Anreicherung LN

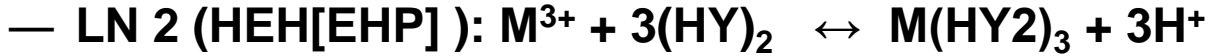
— LN (HDEHP):

Di(2-ethylhexyl)orthophosphoric acid

Elution Condition: 6 M HNO₃

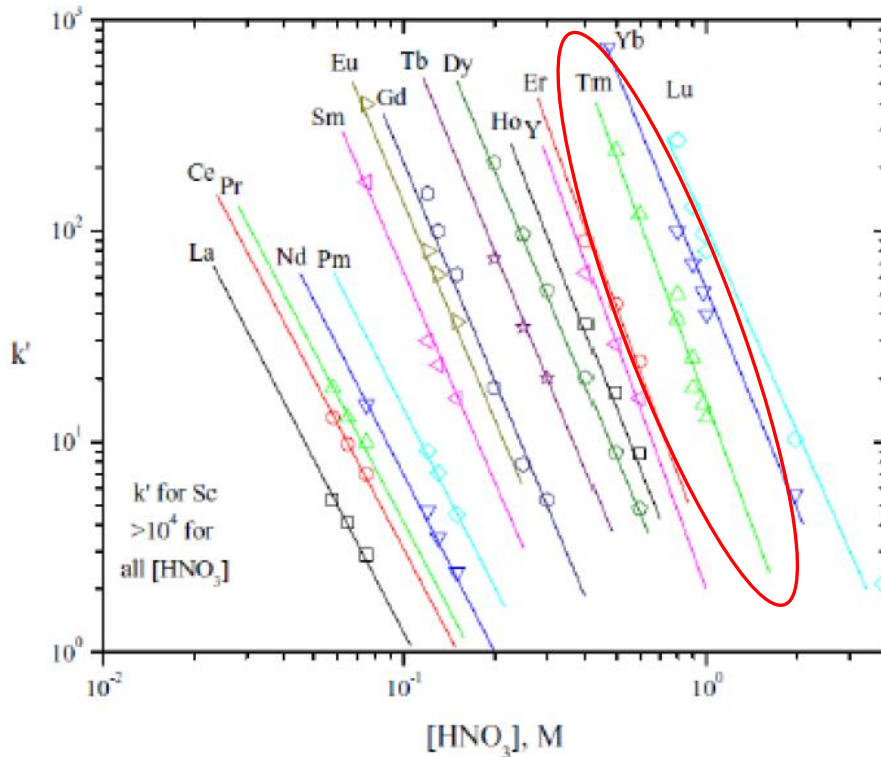
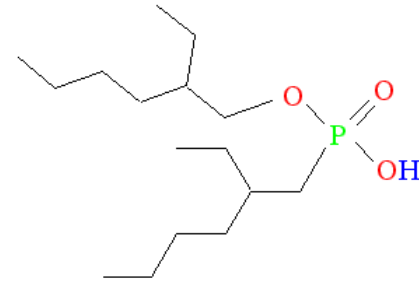


Messmethoden – Anreicherung LN 2



Mono(2-Ethylhexyl)2-Ethylhexylphosphonate

Elution Condition: 4 M HNO_3

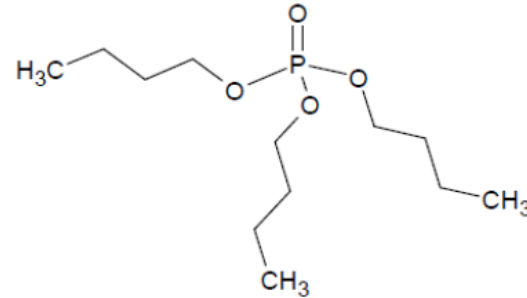
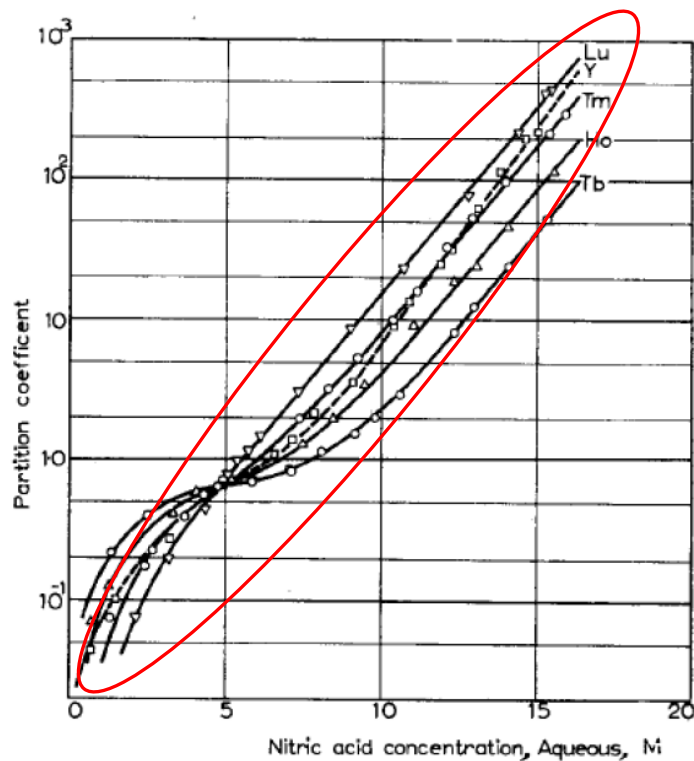


Messmethoden – Anreicherung TBP

— TBP: $M(NO_3)_3 \cdot 3 TBP$

Tri-*n*-butylphosphat

Elution Condition: 2 M HNO_3



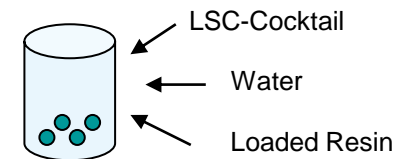
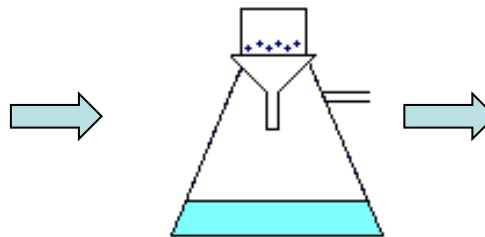
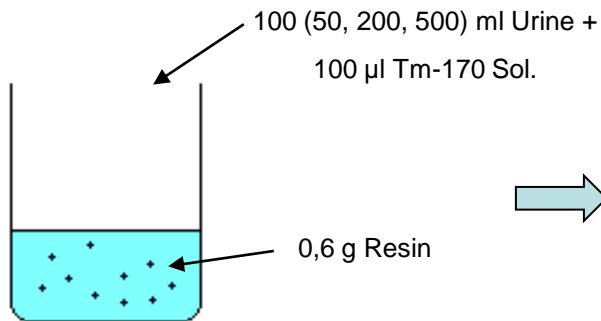
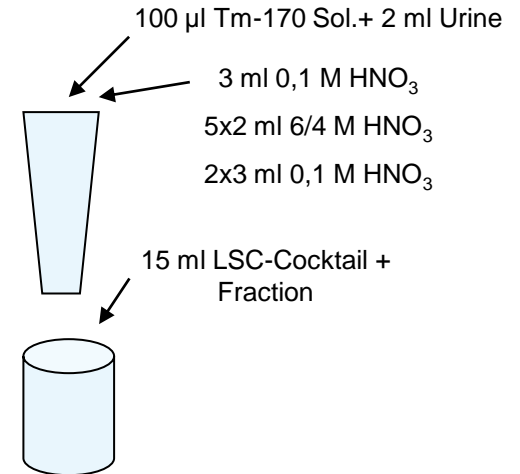
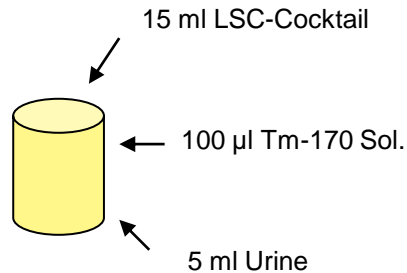
Messmethoden - Übersicht

— Cherenkov (β^-)

— LSC (β^-)

- **Urin direkt**
- **Nach Anreicherung**
- **Beladenes Harz**

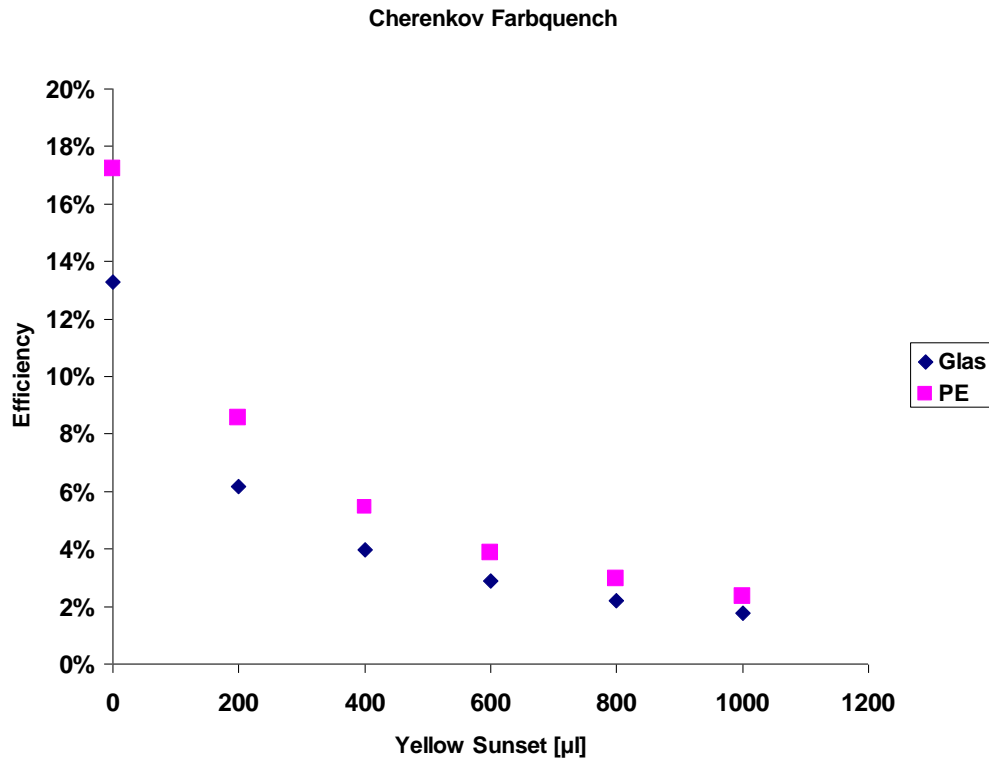
— Ganzkörperzähler (γ)



Messmethoden - Ergebnisse

— Cherenkov (β^-)

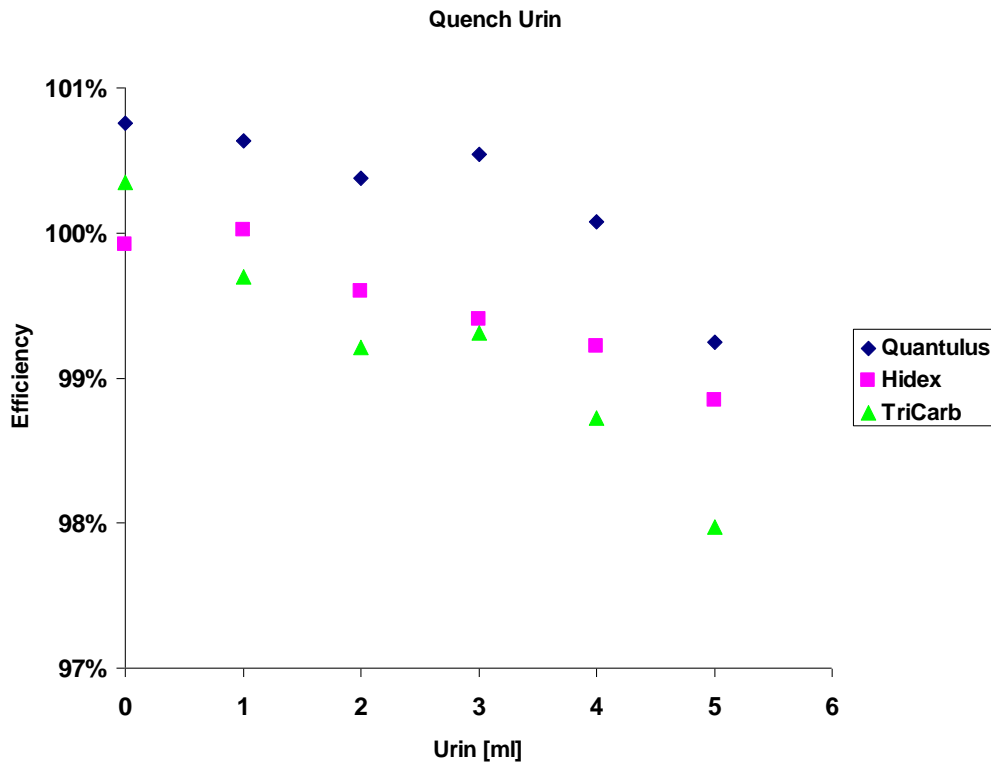
- Farbquench => nicht geeignet



Messmethoden - Ergebnisse

— LSC - Urin Direktmessung

- Max. 5 ml

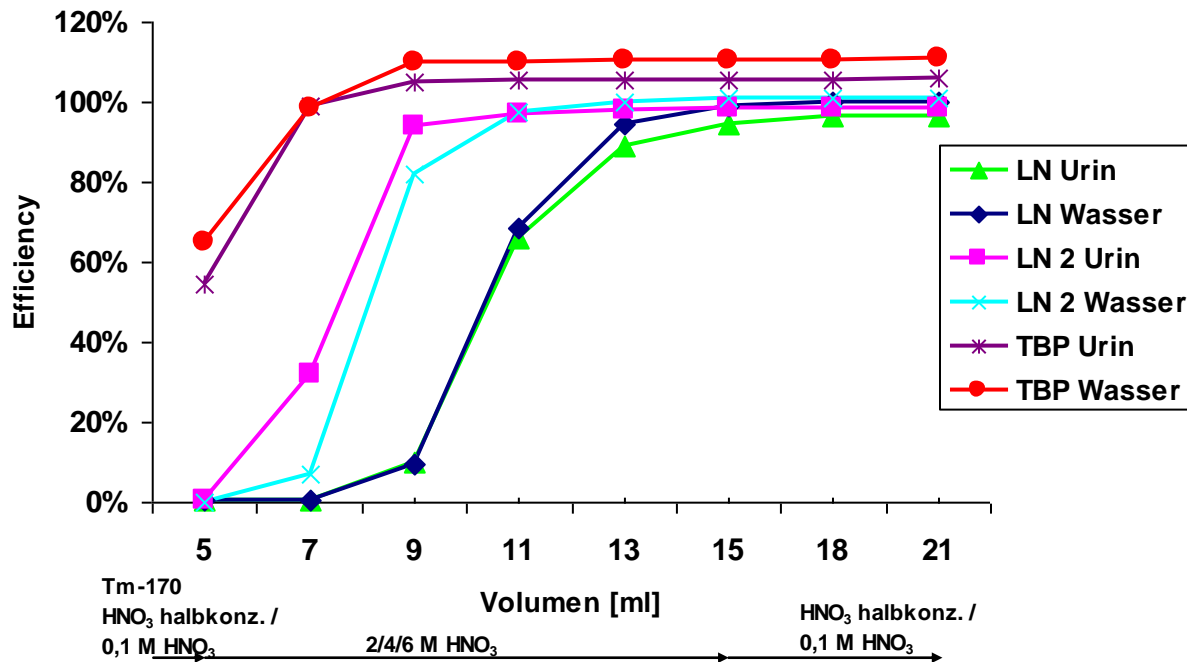


Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Angereicherte Fraktion

- LN und LN 2 geeignet

Wiederfindung Tm-170 in Urin und Wasser

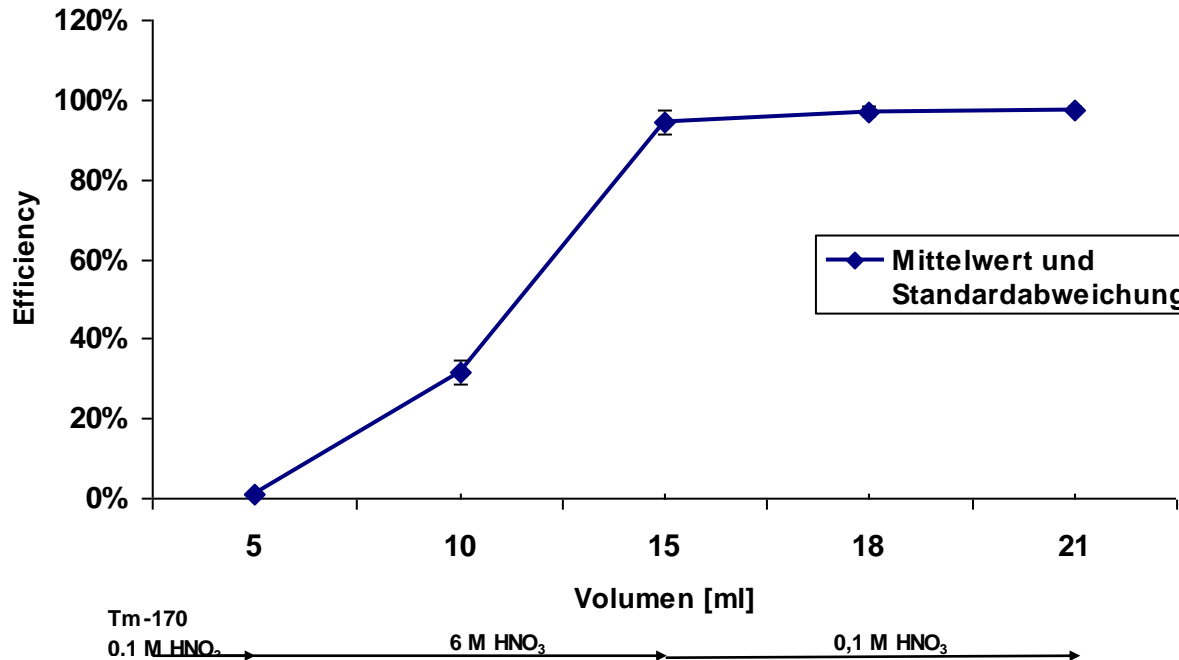


Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Angereicherte Fraktion

- Wiederverwendung LN (11 x)

Wiederfindung bei Wiederverwendung LN

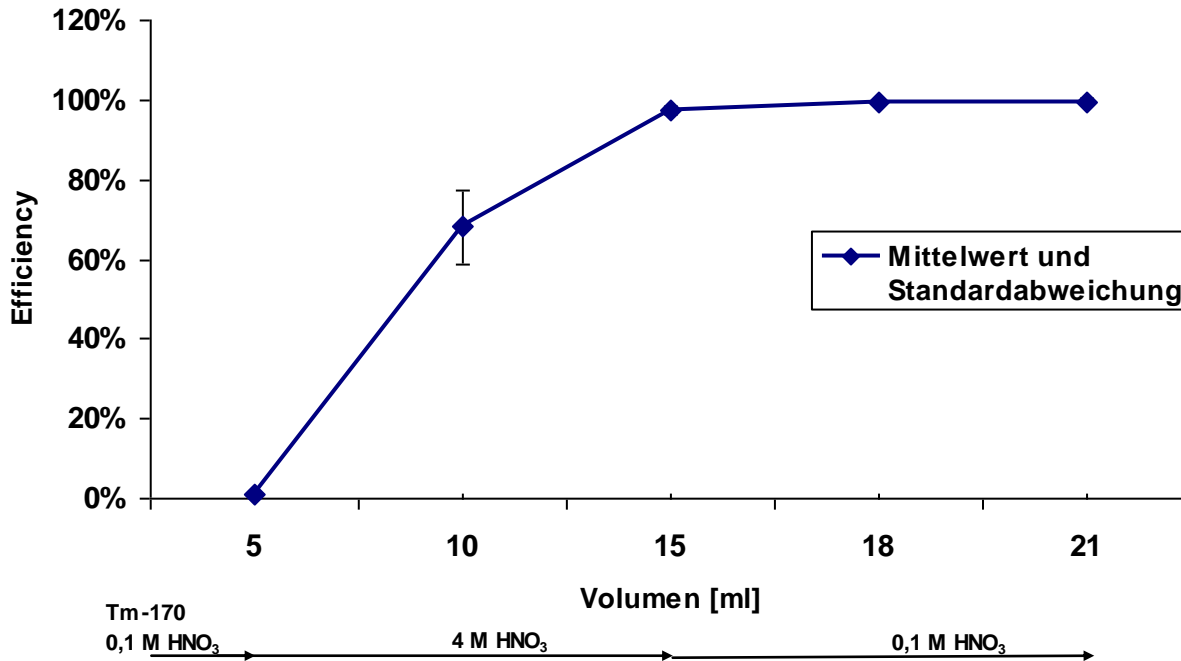


Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Angereicherte Fraktion

- Wiederverwendung LN 2 (5 x)

Wiederfindung bei Wiederverwendung LN 2

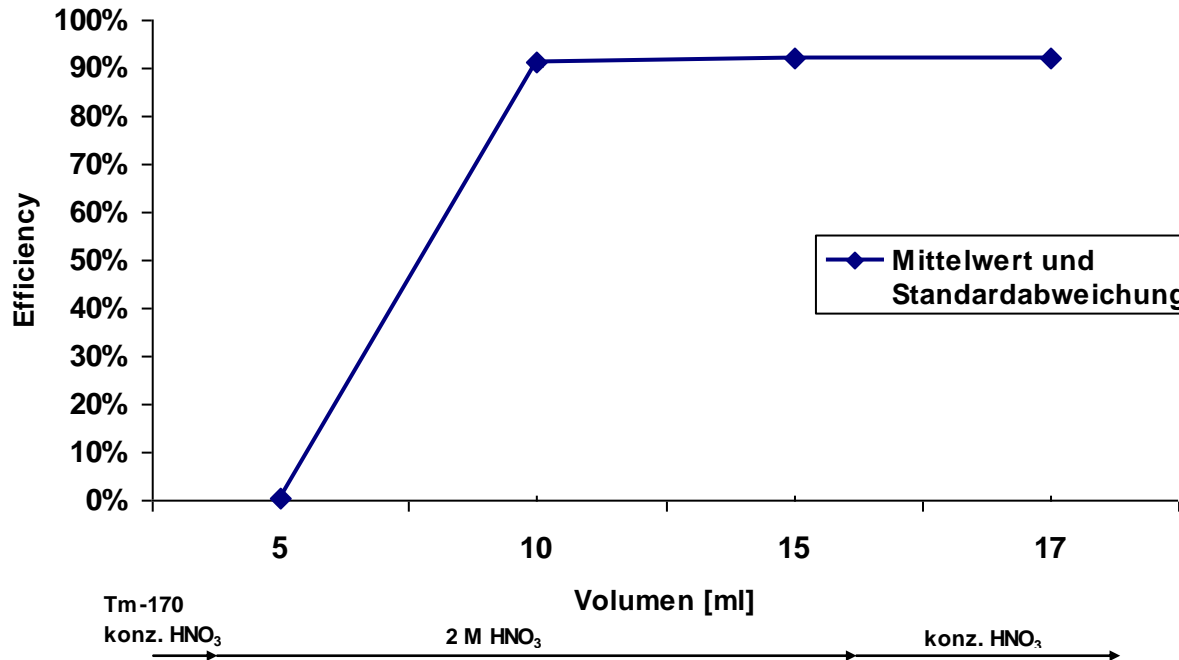


Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Angereicherte Fraktion

- Wiederverwendung TBP (8 x)

Wiederfindung bei Wiederverwendung TBP

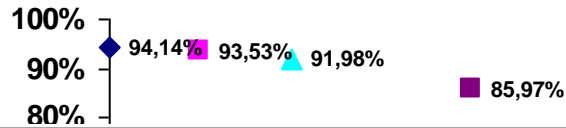


Messmethoden - Ergebnisse

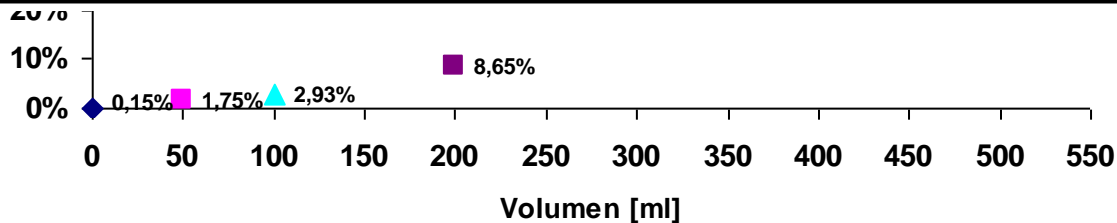
— LSC - Beladenes Harz

- Max. 100 ml
- LN 2 >> LN

Direktmessung LN 2



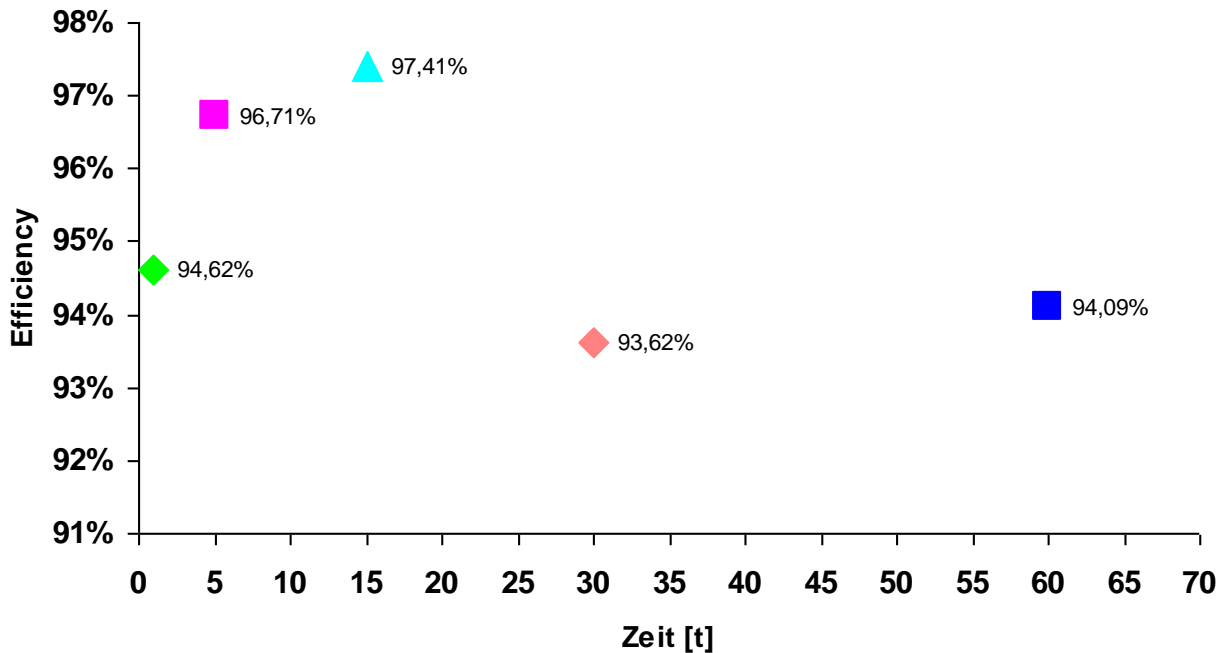
Volumen-Direktmessung	100 ml	200 ml	500 ml
LN Harz	55,35 %	30,99 %	41,07 %
LN 2 Harz	91,98 %	85,97 %	66,29 %
LN Filtrat	20,25 %	64,65 %	60,31 %
LN 2 Filtrat	2,93%	8,65 %	32,31 %



Messmethoden - Ergebnisse

- LSC – Beladenes Harz: Abhängigkeit von Wechselwirkungszeit
 - 15 min. Optimum

Abhängigkeit der Efficiency von der Wechselwirkungszeit



Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Beladenes Harz: Standardmethode

- LN 2, 100 ml Urin, $t_{ww} = 15$ min

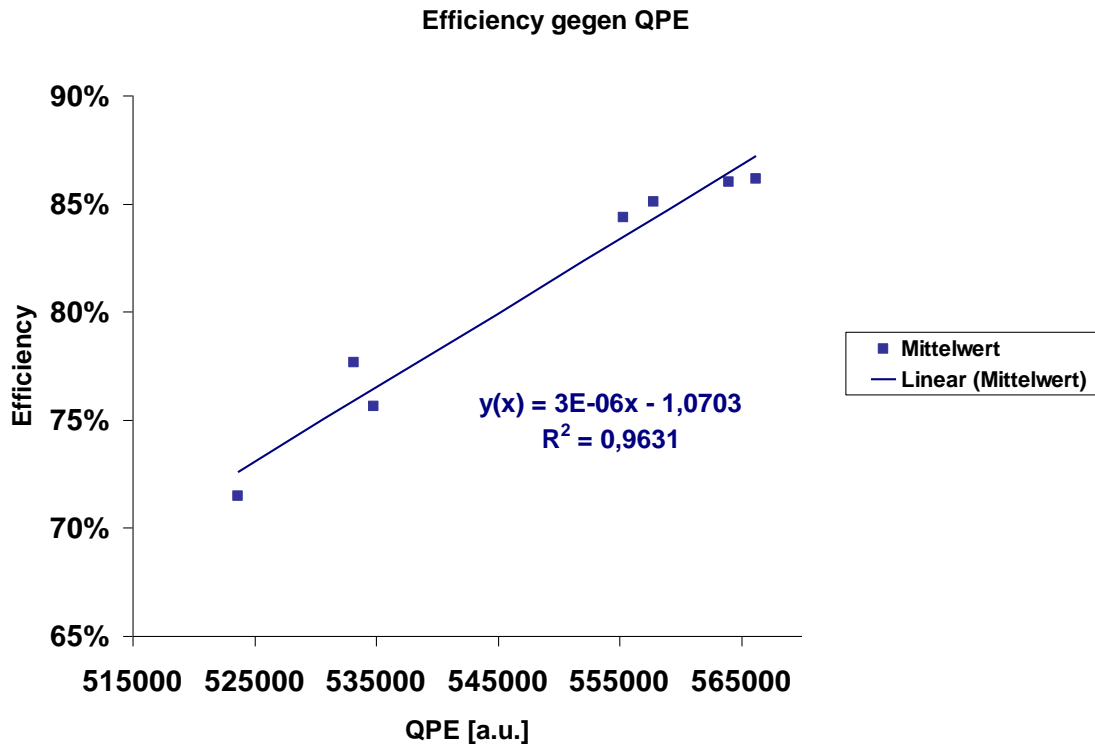


Probe / Wiederholung	Efficiency [%]
A 1 (31.08.10; 12.00)	84,71%
A 2	85,09%
A 3	85,47%
B 1 (31.08.10; 15.30)	86,00%
B 2	86,26%
B 3	85,74%
C 1 (1.09.10; 10.15)	70,99%
C 2	71,84%
C 3	71,51%
D 1 (2.09.10; 7.30)	77,02%
D 2	77,90%
D 3	78,01%
E 1 (2.09.10; 22.00)	75,85%
E 2	75,53%
E 3	75,53%
Mittelwert und Standardabweichung	79,16±5,79%

Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Beladenes Harz: Standardmethode

- Linearität zwischen Quenchparameter und Effizienz



Hidex 300SL

**Unsicherheit der
Methode: 3,7 %**

Zeit Essay: 3,5 h

Messmethoden - Ergebnisse

— LSC – Beladenes Harz: Standardmethode

- **Nachweisgrenzen**
 - PE >> Glas
 - Cherenkov » LSC and Resin
 - Quantulus » Hidex
 - Resin » LSC

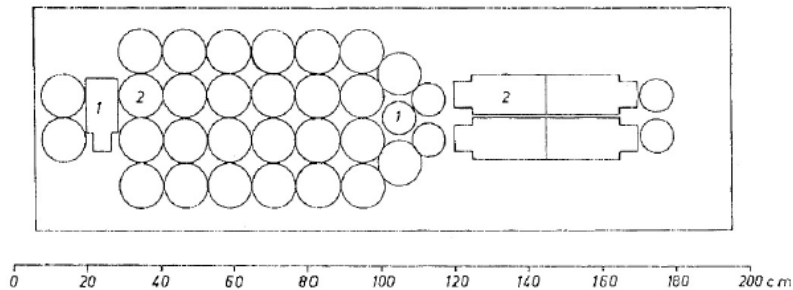
Method	Vial	Limit of detection [mBq/sample]			Limit of detection [mBq/day]		
		Quantulus	Hidex	TriCarb	Quantulus	Hidex	TriCarb
LSC	Glass	30	54	33	7200	12960	7920
	PE	21	50	28	5040	12000	6720
Cherenkov	Glass	2	7	-	200	700	-
	PE	1	6	-	80	480	-
Loaded Resin	Glass	31	52	-	372	624	-
	PE	17	44	-	204	528	-

Messmethoden - Ergebnisse

— Ganzkörperzähler (γ)

- Mit und ohne Phantom (K-40)
- Messzeit 20 und 60 min

Phantomlänge: ca. 170 cm



Whole body	NaI / LOD [Bq]	HeGe / LOD [Bq]
20 min.	1380	607
Phantom 20 min.	9500	12580
Phantom 60 min.	5550	7269

Zusammenfassung

- **Direkte Anreicherung funktioniert sehr gut mit LN 2**
- **Einfache und schnelle Methode für LSC wurde entwickelt**
- **Ganzkörperzähler ist Alternative**
- **Mit LSC ist der Ausschluss einer effektiven Folgedosis (50 Jahre) von 1 mSV länger möglich (bis 360 Tage nach Inkorporation)**



Danksagung

- Prof. Wolfgang Petry für die Betreuung innerhalb der TUM
- Dr. Udo Gerstmann für die Betreuung am BfS
- Dr. Steffen Happel für die Bereitstellung von Harzen



Vielen Dank für Ihre Aufmerksamkeit!

