

**Aus der Wissenschaftlichen Einrichtung
Radiologie , Nuklearmedizin und Physikalischen Therapie (WE10)
der Freien Universität Berlin , Klinikum Steglitz (FB 2)
Geschäftsführender Direktor: Prof. Dr. H. Ernst**

**Pb²¹⁰-Kontamination von Goldschmuck -
Entstehung, Dosis und Effekte**

**Inaugural – Dissertation
zur Erlangung der medizinischen Doktorwürde
an den medizinischen Fachbereichen
der Freien Universität Berlin**

**vorgelegt von
Michael Giehl
aus Frankenthal/Pfalz**

Referent: Prof. Dr. P. Koeppe

Korreferent: Prof. Dr. P. Schaefer

Gedruckt mit Genehmigung der medizinischen Fachbereiche

der Freien Universität Berlin

Promoviert am 8. September 1989

Für

朴
美
玉

*Für die Überlassung des Themas das ständige Interesse
und die stetige wohlwollende Förderung dieser Arbeit
möchte ich an dieser Stelle Herrn Professor Dr. Koeppe
meinen herzlichsten Dank sagen.*

Inhaltsverzeichnis

- 1 Einleitung
- 2 Strahlentherapie mit Radonseeds
 - 2.1 Indikationen und Anwendungen
 - 2.2 Hauptanwendungszeit
 - 2.3 Anwendungsorte
- 3 Berichte über Spätschäden
 - 3.1 Spätwirkungen in situ verbliebener Radonseeds
 - 3.1.1 - 3.1.5 Fallbeschreibungen von Spätwirkungen
 - 3.2 Mit Radonseeds kontaminierter Schmuck
 - 3.2.1 - 3.2.13 Fallbeschreibungen zum "strahlenden Schmuck"
- 4 Strahlenphysik der Seeds
 - 4.1 Grundlagen der Radioaktivität
 - 4.1.1 - 4.1.8 Zerfallsreihen
 - 4.2 Zusammenstellung der Emissionen alter Radon Seeds
 - 4.2.1 Direkte Strahlung
 - 4.2.1.1 - 4.2.1.2 Strahlungsarten
 - 4.2.2 Sekundär auftretende Strahlung
 - 4.2.2.1 Bremsstrahlung
 - 4.2.2.2 Charakteristische Strahlung
 - 4.3 Aktivitätsverlauf und Dosimetrie
 - 4.3.1 Messungen
 - 4.3.2 Berechnungen
 - 4.3.3 Eigene Berechnungen
 - 4.3.3.1 Zeitlicher Verlauf der Folgeaktivitäten
 - 4.3.3.2 Graphische Darstellungen
 - 4.3.3.3 Erläuterungen zu den graphischen Darstellungen
 - 4.3.3.4 Dosisberechnung
 - 4.3.3.5 Örtliche Dosisleistungsverteilung
- 5 Biologische Wirkungen
- 6 Diskussion
- 7 Zusammenfassung
- 8 Literaturverzeichnis

1 Einleitung

In neuerer Zeit wurde über Strahlenschäden der Haut im Zusammenhang mit dem Tragen von Goldschmuck berichtet. Es stellte sich heraus, daß das Gold mit radioaktivem Blei aus alten "Radonseeds" kontaminiert war. Hieraus ergeben sich folgende Fragen:

- woher kamen die Radonseeds,
- wann wurden sie hauptsächlich eingelegt,
- welche Strahlung geben "alte" Radonseeds ab,
- wie groß ist die Reststrahlung,
- sind Wirkungen in situ verbliebener Seeds bekannt?

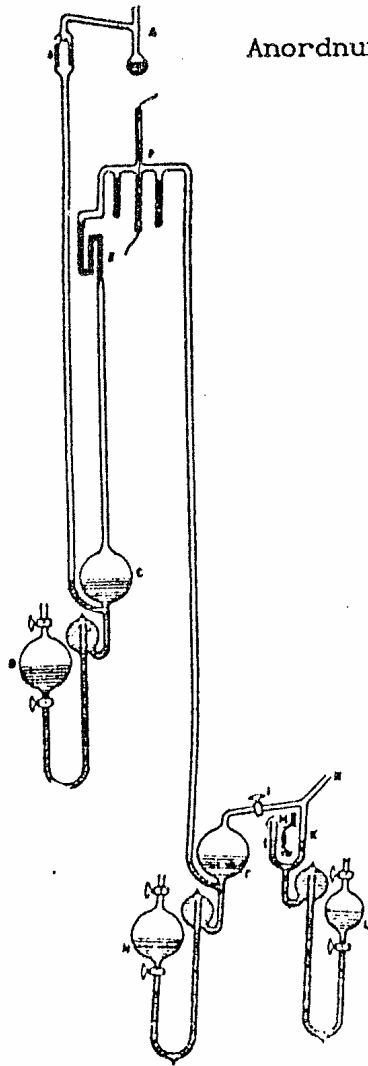
2 Strahlentherapie mit Radonseeds

2.1 Indikationen und Anwendungen

Schon wenige Jahre nach seiner Entdeckung durch Mme Curie wurde Radium auch zur Behandlung bösartiger Geschwulste eingesetzt. Anfangs gab es für die lokale Behandlung nur unförmige Radiumbehälter, die direkt in den Tumor eingelegt wurden. Nach einer bestimmten Zeit wurden sie entfernt. Ab der ersten Dekade dieses Jahrhunderts war das Memorial Hospital N.Y. eine der führenden Institutionen auf dem Gebiet der Brachytherapie mit EWING, JANEWAY, BARRINGER, FAILLA, und QUIMBY als Mitarbeitern. (/CENTER NEWS 91/)

2.2 Hauptanwendungszeit

Erst 1914 berichtete /STEVENSON/ über eine Technik, bei der Radon in Glaskapillaren abgefüllt und in hohlen Stahlnadeln appliziert wurde. 1917 schlug /DUANE/ vor, gläserne Radon Seeds für interstitielle Behandlung zu verwenden (Abb. 2.2 C). Die Glasröhren hatten einen Durchmesser von 0,4 mm und 3 bis 4 mm lange Abschnitte. Sie wurden direkt in den Tumor eingelegt und verblieben dort. Die Technik wurde von JANEWAY weiter entwickelt. Es entstanden jedoch Nekrosen und Schmerzen durch die absorbierte β -Strahlung (JANEWAY zit. nach /BOGGS/) Die Radonnadeln von REGAUD hatten bei seinen



Anordnung zur Gewinnung von Radon (/DUANE/, 1917)

Der Kolben A enthält in Wasser gelöstes Radiumsalz. Dieses wandelt sich selbst in Radon um und zersetzt das Wasser in Wasserstoff und Sauerstoff, die dann in 200.000 fach größerer Menge vorliegen. Ebenso liegt auch das gleichzeitig entstandene Helium mengenmäßig einige % über dem Radon, sodaß sich täglich etwa 140 bis 240 mCi [5,18 bis 8,88 GBq] Radon mit einem Volumen von 0,084 - 0,144 mm³ in einem Gasgemisch von etwa 18 - 36 cm³ ansammeln. Dieses Gemisch hat über eine Steuerung durch verschiebbare Quecksilberspiegel (C, D) Zugang nach F. Dort befinden sich ein auf Rotglut erhitzter Kupferdraht der Wasserstoff und Sauerstoff wieder rekombiniert, und Phosphorpentoxid, das das entstehende Wasser bindet. Die Reaktion findet unter beinahe Vakuumverhältnissen statt. Das gereinigte Radon kann über den Hahn I bei N abgefüllt werden. Die restlichen Kolben (K, L, M) dienen zur Luftentleerung des Systems. Das Gerät war länger als 4 Jahre zur Radongewinnung eingesetzt, enthielt über 920 gr. Radium und erzeugte monatlich mehr als 4,5 Ci [166GBq] gereinigtes Radon.

Abb. 2.1

Radon gefüllte Glasröhrchen (A), konnten zur Filterung in Stahlnadeln (B) gesteckt werden und mit diesen oder auch einzeln mit dem Halteapparat (C) zur Bestrahlung großer Hautareale mit Pflaster befestigt werden (DUANE, 1917).

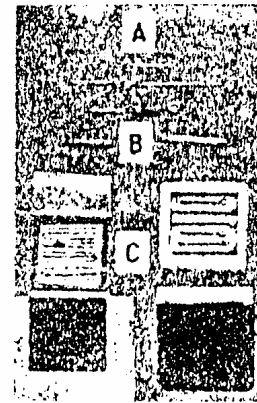


Abb. 2.2

Studien 1920 eine Wanddicke von 0,5 mm Platin, wodurch die gesamte β -Strahlung ausgefiltert wurde (nach /BOGGS/). /FAILLA/, der auch in Paris bei den Curies war (/CENTER NEWS/), benutzte Goldnadeln mit einer Wanddicke von 0,3 mm. Das Gold absorbiert praktisch die gesamte β -Strahlung (>99%), und die Abmessungen der Nadeln waren genügend klein, um in Lokalanästhesie implantiert zu werden. Diese Technik wurde dann von zahlreichen Radiologen übernommen. Die aufsehenerregenden Erfolge der externen Strahlentherapie (Telethe-

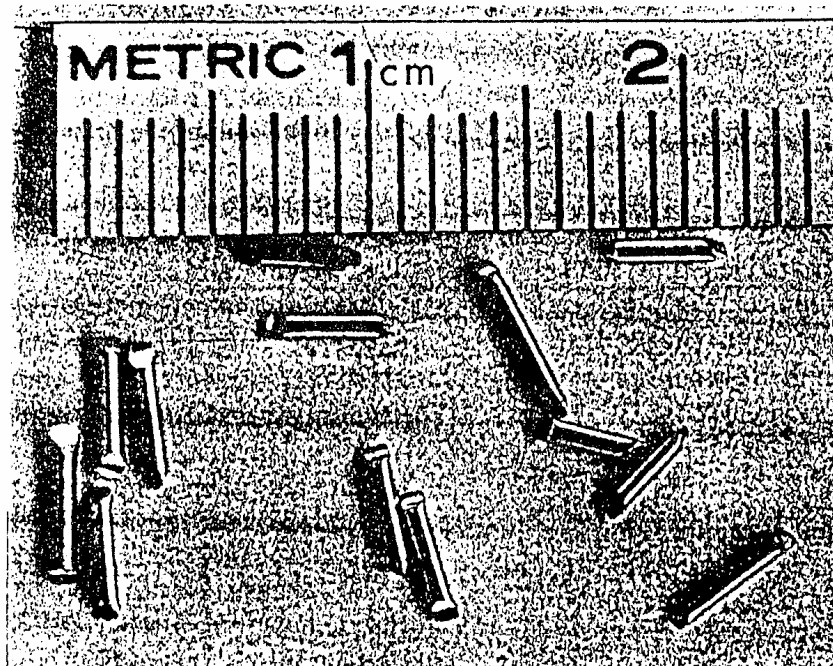


Abb. 2.3

Die Radonseeds hatten folgende Abmessungen: 4mm Länge, 0,75 mm Außendurchmesser, 0,3mm Wanddicke, 0,5-5mCi [18,5-185MBq] Aktivität und das Wandmaterial war 24 K (=0,0327 gr) Gold. (BOGGS, 1969)

rapie) nach dem zweiten Weltkrieg verringerten jedoch den Einsatz implantierbarer Strahlenquellen. Immerhin waren 1966 nach /BOGGS/ der amerikanischen Gesundheitsbehörde noch 158 Ärzte bekannt, die 2241 Patienten mit Radonseeds behandelten. Noch 1980 wurde im Memorial jeder 5. Strahlenpatient (595 von insgesamt 2979) implantiert, 70% davon auf Dauer, die anderen mit der Afterload - Technik, die von HENSCHKE (1956) entwickelt worden war (CENTER NEWS 1981). Als Indikationen blieben nach (/CENTER NEWS/,1981) hauptsächlich Tumoren der Lunge, Prostata, Pankreas und im gynäkologischen Bereich.

2.3 Anwendungsorte

Anfang des Jahrhunderts gab es nur einige Institute, die die Technik der Implantation oder Brachytherapie erforschten: so in New York, Paris, London, Berlin und Stockholm (zit. nach /CENTER NEWS/). /STEVENSON/ veröffentlichte einen Bericht über die Technik aus Dublin 1914. /DUANE/ beschreibt 1917 einen Apparat zum Herstellen von Radonseeds und berichtet über deren klinische Anwendungen in Boston. 1922 berichtete /TOMANEK/ über die Methode, die er in New York und Buffalo kennengelernt hatte, in der MMW, und 1926 stellte /PETROW/ aus Leningrad das Verfahren (mit

Glasröhrchen) in der DMW vor. 1931 bietet /WOLF/ aus Berlin in der MMW "einen neuen, sehr einfachen Apparat zur Erzeugung von Radiumemanation" an.

3 Berichte über Spätschäden

Um eine mögliche Wirkung Radonseed kontaminierten Schmucks einschätzen zu können, erschienen Arbeiten von Interesse, die eine Langzeitwirkung intakter Seeds, bei denen also strahlende Partikel nicht an die Oberfläche gelangten, beschrieben.

3.1 Spätwirkungen in situ verbliebener Radonseeds

3.1.1 Ulzeration nach 20 Jahren

Über Spätwirkungen (20 Jahre nach der Einlage) von intakten Radonseeds in situ hatte bereits 1953 /DOWNING/ in Boston berichtet. Zunächst stellt der Autor fest, daß Radon ebenso wie Radium nur geringen therapeutischen Wert hat, da es ein reiner α -Strahler ist. RaB und RaC emittieren β - und γ -Strahlen als therapeutisch wirksame Strahlung. Radon Gas wird von einer wässrigen Lösung eines löslichen Radiumsalzes (Ra ist ein Metall) gewonnen, gereinigt und in dünnen hermetisch verschlossenen Behältern aus Feingold konzentriert. Die Länge der Röhrchen beträgt 4mm, die Wandstärke 0,3mm und der Außendurchmesser 0,75mm. Bei Beschickung liegt eine Anfangsaktivität von 0,5 - 4 mCi [18,5-148MBq] Radon vor. 1 mCi [37 MBq] Radon ist jene Menge, die im Gleichgewicht mit 1 mg Radium steht.

"Eine 45 jährige Lehrerin wurde 1936 wegen eines Basalzellepitheliom am Kinn unter anderem mit 4 seeds behandelt. 1953 brach an der inzwischen verheilten Stelle ein Geschwür auf, aus dem ein seed hervorkam. Ein zweites konnte von der Patientin selbst herausgedrückt werden. Nach Meinung des Autors wanderten diese beiden seeds im Laufe der Jahre nach

außen und verursachten an der Haut eine Fremdkörperreaktion, während die seeds in der Tiefe keine Reaktion verursachten ("will probably cause no trouble")."

3.1.2 Ergebnisse von Nachsorgeuntersuchungen

1960 berichtete /GRAHAM/ über mögliche Zusammenhänge zwischen Reststrahlung alter Radonseeds und Spätkomplikationen:

"Bei 5 Fällen von Plattenepithelkarzinom der Zervix wurden 1958 Radonseeds entfernt."

Fall	Jahr d. Einlage	Stadium	Alter	Anzahl Seeds	Anfangsakt		nach Jahren		Endakt.	
					[mCi]	[MBq]	Sympt.	Entf.	[mCi]	[MBq]
1	1939	IV	38	9	13,8	510,6	16	19	25	925
2	1933	II	43	12	13,65	505	11	25*	85	3145
3	1946	II	52	10	12	444	12	12*	24	888
4	1947	III	38	10	10	370	11	11	137	5069
5	1938	II	56	9	10,7	396	20	20	48	1776

Die Bestimmung der Endaktivität erfolgte mit einem Schilddrüsen Szintillationszähler in % über dem Hintergrund. Insgesamt wurden 18 Patienten gemessen. 14 von ihnen hatten im Röntgenbild weniger seeds als eingelegt worden waren (Verlust von 1 - 6 seeds)."
(* verstorben)

3.1.3 Weitere Auswertungen der Nachsorgeuntersuchung

1968 stellte /GRAHAM/ fest, daß bei Patienten mit Radonseed Behandlung (Zervixkarzinom) in den Jahren von 1927 - 1953 die Bildung neuer Krebsarten durch die Seedbehandlung beeinflusst wurde. Die Patienten ohne Seedbehandlung zeigten höhere Überlebensraten (etwa zweifach erhöhtes Risiko). In seiner Arbeit werden auch Vergleiche mit den Ergebnissen reiner Strahlenbehandlung (mehr Strahlenschäden, da höhere Gesamtdosis, weniger Leukämien usw.) angestellt.

3.1.4 Strahlendermatitis nach 25 Jahren

/AUERBACH/ schreibt 1971 über Strahlen-Dermatitis als Folge von Radonseeds:

"Im Oktober 1968 wurden einem 47jährigen Mann Radonseeds aus den Wangen entfernt, die 25 Jahre zuvor wegen Akne eingelegt waren. Schon viele Jahre hatte er Narben vor beiden Ohren bemerkt; seit etwa einem Jahr rechts auch ein Geschwür. Links war nun eine atrophische, 3,5 x 2 cm² große, feste Narbe mit Teleangiektasien zu sehen, rechts noch zusätzlich ein tiefes, verkrustetes, leicht eitriges Geschwür an der oberen Seite der Narbe. Mit einem empfindlichen α -Detektor konnte keine Strahlung festgestellt werden. Als Therapie wurden die Narben zweizeitig in Lokalanästhesie exzidiert."

Nach der klinischen Beschreibung kommentiert /AUERBACH/ den physikalischen Sachverhalt:

"Rn zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3,83 Tagen unter Emission einer α -Strahlung von 5,49 MeV über RaA (Halbwertszeit 3,05 min) nach RaG, einem stabilen Bleisotop, sodaß keine oder nur extrem geringe Strahlung zu erwarten war."

Strahlendermatitis jedoch habe eine maligne Potenz, was er durch Autoren belegt, die eine Latenzperiode von 1.5 bis 43 Jahren annehmen.

/CAMIEL/ korrigiert ein Jahr später AUERBACH's Ansichten, daß nicht die in der Goldhülle der Seeds absorbierten α -Strahlen des Radons, sondern die β - und γ -Anteile der Zerfallsprodukte wirksam seien. Von diesen sei das Pb²¹⁰ mit einer Aktivität von 0,1 μ Ci pro mCi [0,1kBq/MBq] Anfangsaktivität Radon langlebig. 1973 publiziert /AUERBACH/ den gleichen Fall noch einmal, zwar ohne diese Korrektur, jedoch mit noch einer zusätzlichen Beschreibung der Zerfallsreihe des Radon. Nach wie vor nimmt er jedoch keinen Strahlenschaden an.

3.1.5 Strahlenwirkungen nach 33 Jahren

1975 berichtet /GOLDSTEIN/ aus Hawaii über Radonseeds, die 33 Jahre in situ geblieben waren.

"Bei einer 32 jährigen Frau, der im Alter von 6 Monaten wegen eines Gefäßschadens ihrer Lippe Radonseeds eingelegt wurden, wurde 1972 ein asymptomatischer Lippenschaden festgestellt. Die rechte Seite der Oberlippe war überpigmentiert, atrophisch und hatte feine Teleangiektasien um ein golden durchscheinendes Metall unter der Haut. Röntgenologisch wurde in der Tiefe noch ein weiteres seed entdeckt. Das Oberflächliche konnte leicht exzidiert werden, und eine (Ionen-)Dosisleistung von etwa 0,2 mR/h [$\approx 0,55\text{nGy/s}$] wurde gemessen. Das zweite seed wurde während des chirurgischen Aufbaus der Lippe entfernt. Die Histologie zeigte eine extrem dünne Epidermis. Eine ausgeprägte basophile Kollagendegeneration mit chronischen Entzündungszellen bildete eine Kapsel, die das seed enthielt. Diese Methoden, Neoplasmen, Gefäßtumoren, Akne und andere dermatologische Probleme zu behandeln, seien nun veraltet, weshalb Radonseeds sehr selten geworden seien. Ein seed wiegt insgesamt nur etwa 30,5 mg bei einer Größe von $4 \times 0,75 \text{ mm}^2$ und einer Wandstärke von 0,3 mm."

/GOLDSTEIN/ erwähnt anschließend die beiden Publikationen von /AUERBACH/ und die Korrekturen von /CAMIEL/ (3.1.4). Ebenso wird /DOWNING/ (3.1.1) zitiert, von dem er die Meinung übernimmt, daß die Restaktivität keine biologische Wirkung mehr habe. In der ihm bekannten Arbeit von /JOHNS/, die hier noch an späterer Stelle (siehe 4.3.2) vorgestellt wird, wird jedoch eine Strahlenwirkung angenommen. /GOLDSTEIN/ zitiert dann noch drei herausgearbeitete Bedingungen für biologische Strahlenwirksamkeit:

- Die Strahlendosis muß eine gewisse Mindestgröße erreichen.
- Die Strahlung muß bis zu den reaktionsfähigen Zellen dringen
- Die Substanz muß eine Mindestlebensdauer haben, um eine gewisse Strahlungsdauer zu erreichen.

So entscheidet er sich dann doch, daß die geringe Strahlendosis (er berechnet 11,127 rd/a [3,526nGy/s]) nicht für eine Strahlendermatitis ausreicht, empfiehlt aber trotzdem regelmäßige Kontrollen; besonders, wenn noch zusätzliche Strahlung hinzukommt, wie z.B. das Sonnenlicht auf Hawaii.

3.2 Mit Radonseeds kontaminierter Schmuck

Ab 1967 erschienen Veröffentlichungen über Strahlenschäden, die durch Hautkontakt mit Goldschmuck entstanden sein könnten.

3.2.1 Zwei Fälle von strahlenden Eheringen (1967)

/SIMON/ berichtete 1967 über zwei Fälle, die als Strahlendermatitis gedeutet wurden:

Fall 1:

"Eine Ehefrau bemerkte etwa 1 Jahr nach ihrer Heirat vor 26 Jahren (1940) einen Ausschlag unter ihrem Ehering. Ebenso zeigten sich bei dem Mann Hautreaktionen am Ringfinger. Zuerst wurde an eine Waschmittelallergie gedacht. Jucken, Rötung und später Blasenbildung zwangen jedoch beide, ihre Ringe ab 1945 dauernd abzulegen. Obwohl die Frau in der Folge immer Baumwolleinlagen unter ihren Gummihandschuhen trug, blieb die Dermatitis. Eine Röntgenbestrahlung in den Jahren 1951 und 1953 brachte keine Besserung. Bei der Untersuchung war eine unregelmäßig begrenzte, erhabene Verdickung rund um die Basis des linken Fingers zu sehen, mit kleineren Kontaktschäden an den angrenzenden Fingern. Der Mann hatte tiefe Fissuren, die von verhornter, trockener und erhabener Haut umgeben waren. Die Haut über dem Knochen war frei beweglich, es gab keinen Anhalt für eine tiefe Fibrose, röntgenologisch wurde normaler Knochen gesehen und in der linken Achsel war ein 1 cm großer Lymphknoten zu tasten. Beiden wurde geraten, die betroffene Haut entfernen und die Wunde transplantieren zu lassen. Eine

Messung ergab, daß die Ringe mit Zerfallsprodukten von Radon kontaminiert waren."

Fall 2:

"Ein anderer strahlender Goldring (Memorial Hospital) wurde in einem abgeschirmten Behälter verwahrt, nachdem er Hautreaktionen verursacht hatte und bekannt wurde, daß er aus mehr als 100 alten Radonseeds hergestellt worden war. Die Ringe gaben in beiden Fällen noch meßbare radioaktive Strahlung ab. Da kaum jemand bei der Goldverarbeitung über Strahlungsmeßgeräte verfügt, muß angenommen werden, daß radioaktiv kontaminierte Gold unraffiniert auf den Markt gelangen konnte. Daher sollten Juweliere darauf achten, ob einige Kunden auf der Haut nur bestimmte Sorten Gold nicht vertragen. Ebenso wird die Möglichkeit erwähnt, daß kontaminiertes Gold unbeabsichtigt zu Zahnfüllungen verarbeitet sein könnte, was eine Wangenreaktion verursachen würde. Unerklärliche Hautreaktionen bei Goldkontakt sollten also an Strahlung denken lassen, und zu verarbeitendes Gold sollte auf Strahlung überprüft werden."

3.2.2 Dermatitis durch einen Goldring (1968)

/LEONE/ berichtete ein Jahr später (1968) über die Arbeit von /SIMON/ (vergl.3.2.1) und fügt eine weitere Fallbeschreibung einer Radiodermatitis an, die durch einen strahlenden Goldring verursacht wurde:

"Eine 66 Jahre alte Frau hatte 1967 eine chronische Dermatitis, die sich 1923 unter ihrem goldenen Ehering entwickelt hatte, nachdem sie ihn 2 Jahre getragen hatte. Es begann mit einem Erythem, leichter Abschuppung mit wenig oder keinem Jucken und blieb auch nach Entfernung des Rings. Im Laufe der Jahre verschlimmerte sich der Zustand langsam. Daher hatte sie die letzten 5 Monate den Ring nicht mehr getragen. Man konnte ein scharf begrenztes bandförmiges Erythem auf der Haut, die von dem Ring bedeckt gewesen war, sehen. Es zeigten sich Verhor-

nung, Erythem und zerstreute Atrophiegebiete hauptsächlich in dem angrenzenden Gewebe. Die Haut war über dem Knochen verschieblich. Vergrößerte Lymphknoten waren nicht zu tasten. Eine Biopsie der indurierten, hyperkeratotischen Stelle zeigte keine invasive Malignität. Veränderungen im Unterhautgewebe wiesen auf die Durchdringungsfähigkeit der Strahlen hin. An dem Ring wurde kein Radium entdeckt, aber Strahlung, die auf Pb^{210} hinwies. Es wurde eine Aktivität von 3104 DPM α -Partikeln und 2105 DPM β -Partikel gemessen. Die γ -Komponente betrug hauptsächlich 47keV (das Meßgerät war nicht für DPM geeicht). Chronische Radiodermatitis werde gewöhnlich leicht erkannt: Das Gebiet ist gut abgegrenzt, mit Hyper- und Hypopigmentation, Teleangiektasien, Atrophie, Hyperkeratosis, Erythem und hämorrhagischen Stellen. Hier jedoch war nicht das klassische Bild vorherrschend: Erythem und Hyperkeratose standen im Vordergrund. Die Hauptstrahlungsquelle war Pb^{210} , ein β -Strahler mit einer Halbwertszeit von 22 Jahren."

3.2.3 Hautkrebs durch einen vergoldeten Kamee Ring (1968)

Im gleichen Jahr (1968) erschien auch von /GERWIG/ eine Veröffentlichung über strahlenden Schmuck als Ursache von Hautkrebs: Die Arbeiten /SIMON/ (vergl. 3.2.1) und /LEONE/ (vergl. 3.2.2) werden in der Einleitung zitiert und die folgende Fallbeschreibung als vierter ihm bekannten Fall vorgestellt:

"Ein 50jähriger Mann hatte im Verlauf von 30 Jahren drei verschiedene Ringe getragen. Seit Dezember 1935 trug er 21 Jahre schon einen Kamee Ring. 1946 wurde der Ring mit Gold versehen. Wegen Jucken und Unannehmlichkeit wechselte er den Ring vom linken auf den rechten Ringfinger. 1964 legte er den Ring ab wegen ähnlichen Empfindungen an der rechten Hand. Die Untersuchung ergab eine knotig-geschwürige Läsion an der Basis des linken Ringfingers, die bis tief in die Flexorscheide hineinreichte. Die Haut an der Kontaktstelle der Nachbarfinger war verdickt. Der rechte Ringfinger zeigte proximal leichte Teleangiektasien, Hyperpigmentation und Verdickung der Haut. Am

medialen Rand war eine verhornte Papel. Eine Biopsie des Knotens am linken Finger ergab ein infiltrierendes Plattenepithelkarzinom, Entzündung mit dilatierten Blutgefäßen, Rundzellularinfiltration ins Korium und invasive anaplastische Tumorfiltration. Eine Biopsie des rechten Fingers zeigte keine wesentlichen Änderungen, außer erweiterten Blutgefäßen und einer geringen perivaskulären, entzündlichen Leukozyteninfiltration an der Oberfläche, was als leichte Radiodermatitis gedeutet wurde. Der linke Ringfinger wurde amputiert und das Metacarpale exzidiert, der Rechte wurde nicht behandelt. Bei dem verdächtigen Ring wurde eine strahlende Goldeinlage festgestellt, mit einer lageabhängigen Maximaldosis von etwa 700 mrd/h [1,94nGy/s] in der Mitte des Körpers. Ein anderer getragener Ring, der vom gleichen Juwelier vergoldet wurde, zeigte eine Aktivität von 2 mrd/h [5,5pGy/s]. Als Quelle der β -Strahlen wurde Gold von alten Radonseeds vermutet. Der Autor richtet eine dringende Bitte an Allgemeinärzte und Dermatologen, Ringfingerdermatitis auf radioaktive Ursachen zu untersuchen. Bei einem anderen Hauttumor wegen radioaktiven Schmucks wurde an dem untersuchten Ring eine noch höhere β -Aktivität von etwa 900 mrd/h [2,5nGy/s] festgestellt. Morbus Bowen war hier, bioptisch gesichert, die Folge."

3.2.4 Öffentliche Untersuchungen (1968-1969)

Die Arbeiten von /SIMON/ (vergl. 3.2.1) und /GERWIG/ (vergl. 3.2.5) wurden 1968 auch in der /TIME/ vorgestellt. Im gleichen Jahr beschäftigte sich /JONES/ wegen der Schäden durch Radonseeds mit meßtechnischen Problemen (vergl. 4.3.1). 1969 wurde das Thema in einer Fragestunde des Deutschen Bundestags behandelt, und im gleichen Jahr noch von /HACHENBURG/ im Deutschen Ärzteblatt ein Beitrag hierzu geliefert. Ebenfalls 1969 untersuchte das Bureau of Radiological Health (BRH) aufgrund der Vorfälle die frühe Entwicklung, den gegenwärtigen klinischen Einsatz und die Endlagerung der Radonseeds aus Gold, die als Ursache der Strahlung des Goldschmucks in Frage kamen (/BOGGS/).

3.2.5 Bericht über einen mit Radium kontaminierten Ring (1973)

1973 beschreibt /HOLUBAR/ die Wirkungen eines mit Radium kontaminierten Ringes:

"Ein 62 jähriger sonst gesunder Geschäftsmann hatte 1972 eine nach eigenen Angaben 20 Jahre bestehende chronisch entzündliche zum Teil schuppene Hautveränderung an der Kontaktstelle zu einem Ring, den er seit etwa 30 Jahren zu tragen pflegte. Seit vielen Jahren war er deswegen in ärztlicher Behandlung, seit 3 Jahren trug er den Ring nicht mehr.

Lokalbefund: Nach Entfernung einer trockenen Kruste im Bereich des dritten Interdigitalraumes der linken Hand erschien die Haut in diesem Bereich weißlich mazeriert, die Umgebung erodiert und nässend. Die Grundphalanx des linken Ringfingers war entzündlich gerötet, leicht verdickt und zart schuppend. Ekzematöse Veränderungen waren in geringem Ausmaß auch an der ulnaren Seite des Mittelfingers vorhanden. Nach einwöchiger Behandlung zeigte sich bei Rückbildung der entzündlichen Hautveränderungen ein Ulcus, das den Verdacht auf einen Strahlenschaden lenkte. Bei der Untersuchung des Rings wurde Ra^{226} festgestellt (HWZ 1620 Jahre). Es emittiert α - und γ -Strahlung. Im Ring wurde eine α -Emission von (100%): 4,78 MeV und eine γ -Strahlung von (4%): 0,168 MeV, (0,07%): 0,26 MeV, 0,42 MeV, 0,61 MeV gemessen. Ein Geiger-Müller-Zählrohr registrierte 5850 DPM bei einem Hintergrund von 30. Die Histologie ergab eine akantthotisch verdickte Epidermis, Hyper- und Parakeratosen, verplumpte Retezapfen mit schmalen Papillen dazwischen. Innerhalb der Oberhaut war die Schichtenfolge zerstört, die Größe und Gestalt der Zellen und deren Kerne sehr unterschiedlich. Die Kerne waren teilweise pyknotisch und hyperchromatisch, es zeigten sich vermehrte Mitosen und Einzelzellverhornung. Diagnose: Stachelzellkarzinom hervorgehend aus einer bowenoiden Keratose. Wahrscheinlich ist die Interdigitalhaut, die stärker geschädigt worden war, strahlensensibler als die behaarte Haut auf der Rückseite der Finger. Die ulzerierte Hautstelle und deren unmittelbare Umgebung wurden elektrokautisch verkocht."

Zur Kontamination des Rings wird auf /SIMON/ (vergl. 3.2.1), /LEONE/ (vergl. 3.2.2) und /GERWIG/ (vergl. 3.2.3) hingewiesen: vermutlich sei das Gold von Radiumträgern ohne Raffinade benutzt worden.

3.2.6 Untersuchungen der Buffalo Fernsehstation (1981)

Die nächste Veröffentlichung wird von /STEARNS/ 1981 publiziert. Er berichtet zunächst von den bisher bekannten Fällen aus der Literatur (s.o.) und bemerkt, daß noch andere Fälle in Buffalo bekannt wurden, die jedoch bis auf den Bericht von /HOLUBAR/ (vergl. 3.2.5) nicht veröffentlicht wurden. STEARNS waren bereits acht Fälle bekannt, als 1977 ein Mann mit Strahlendermatitis am Ringfinger seine Praxis besuchte, der dann auch das öffentliche Interesse und die Verbreitung in den Medien 1981 auslöste. Nach Bekanntwerden des Falls veranlaßte ein Zuschauer die Buffalo Fernsehstation, eine Prüfstelle für Radioaktivität zu errichten, bei der in der Folge Tausende von Schmuckstücken untersucht wurden, von denen mindestens 150 aktiv waren.

"Soweit bekannt wurde, kam der Schmuck aus New York oder aus dem Nordwesten von Pennsylvania, die Mehrheit jedoch aus zwei oder drei Gegenden. Nach dem ersten Anschein stamme das Gold aus den 30-40er Jahren, nun aber sei auch Metall aus den 50-60ern aufgetaucht. So bei einem Gynäkologen in Ohio, der entdeckte, daß sein Ring strahlte, und einem Kind in Toronto, dessen vergoldetes Kreuz kontaminiert war. Das meiste strahlende Gold wurde für Uhren und Schmuckstücke verwendet, jedoch ist auch ein Fall von einer aktiven Goldzahnfüllung bekannt, die in England angefertigt sein soll. Das induzierte Plattenepithelkarzinom der Schleimhaut wird maligner eingeschätzt als das der Haut. Die Kenntnis, wo überall kontaminiertes Gold aufgetaucht war, sei vom jeweiligen Wissen der Leute abhängig (z.B. sei es in Buffalo, Olean, Rochester und New York allgemein bekannt)."

STEARNS beschreibt die Gefährlichkeit der Situation und zeigt weitere mögliche Verbreitungswege, z.B. über mit Radonseeds behandel-

te Tiere (hauptsächlich Pferde), die zu Tierfutter verarbeitet wurden.

"Normalerweise hat 24 K Gold eine Verunreinigung von 1:10000. Aber das entdeckte Gold war zu 1 ppm rein, solche Reinheit würde normalerweise nur für metallurgische Forschung verwendet."

3.2.7 Stellungnahme des Memorial Hospital (1981)

Im gleichen Jahr veröffentlichte die Zeitschrift des Memorial einen Bericht über Aktivitäten bezüglich des kontaminierten Schmucks:

"Die Fingeramputationen und Teilresektion der Hand einer Frau aus Buffalo (vergl. 3.2.9) und die Fernsehberichte über die Ringe (vergl. 3.2.6) bewirkten, daß seit Januar diesen Jahres mehr als 120 radioaktive Ringe, die meistens vom High School Abschluß stammten, entdeckt wurden. JOHN MATUSZEK teile die Ansicht des Memorial Hospitals, daß das Gold nicht von diesem Krankenhaus kommen könnte, da seit einem Zwischenfall in den frühen 30-er Jahren der Verbleib der Seeds streng kontrolliert werde (der Freund einer MTA, der einen Ring aus alten Radonseeds getragen hatte, bekam Strahlendermatitis; der Ring wird seitdem im Memorial Hospital verwahrt (vergl. 3.2.1)). Ab 1970 würde Iridium und Jod anstelle des Radon , sowie Titan anstelle von Gold verwendet. Das bis dahin über einen Zeitraum von 40 Jahren angesammelte Gold sei einer staatlich anerkannten Ablage ("federally authorized burial location") in Kentucky überstellt worden."

3.2.8 Weitere Fälle (1981)

Das DRUG Bulletin der FDA zitiert 1981 noch einmal die Berichte von /BOGGS/ (vergl. 3.2.4), /LEONE/ (vergl. 3.2.2), /GERWIG/ (vergl. 3.2.3), und /SIMON/ (vergl. 3.2.1) und alarmiert Ärzte und andere im Gesundheitsberuf Beschäftigte, an radioaktiv kontami-

niertes Gold zu denken, wenn Hautläsionen beobachtet werden.

"Im Januar des gleichen Jahres wurden der Gesundheitsbehörde 12 weitere Fälle gemeldet. Ein Medical World News Bericht über ein Plattenepithelkarzinom erneuerte das Interesse. Der Staat N.Y. errichtete ein Meldesystem, das in N.Y. und North Pennsylvania 47 radioaktive Ringe registrierte."

3.2.9 Frühere Fingeramputationen (1981)

Ebenfalls 1981 erscheint ein Bericht von /SHOR/ über BEATRICE YOUNG aus Hamburg, N.Y., die 1941 von ihrem Hochzeitsring nach einigen Monaten Hauterscheinungen bekam und der nach 12 Jahren 3 Finger amputiert werden mußten.

"Im Januar des laufenden Jahres ließ sie im Rahmen der Testaktion der Buffalo Fernsehstation ihren Ring untersuchen, der dann auch einer der 50 entdeckten strahlenden Schmuckstücke war. Der erste "heiße" Ring sei 1967 entdeckt worden. Ein Artikel des Wall Street Journal am 15. Januar (1981?), der auf der ersten Seite eine Zusammenfassung aus einer Medizinzeitschrift veröffentlichte, lenkte das öffentliche Interesse auf den kontaminierten Schmuck. Bis dahin waren bereits 11 Fälle bekannt geworden. Daraufhin kam es zur Testaktion der Fernsehstation. WILLIAM O'BRIAN vom nationalen Gesundheitsdienst wird als Anlaufstelle für Meldungen vorgestellt. Er befürchtet, daß nach der Publizitätswelle das Interesse an dieser Gefahr nachläßt."

3.2.10 Übersicht der bisherigen Aktivitäten (1981)

In einem Artikel der Medical World News wird 1981 die Arbeit von /STEARNS/ (vergl. 3.2.6) beschrieben, der Artikel von /SIMON/ (vergl. 3.2.1) und /LEONE/ (vergl. 3.2.2) erwähnt und Regierungsaktivitäten (WILLIAM O'BRIAN und JOHN M. MATUSZEK (vergl. 3.2.7)) vorgestellt. /HELM/ erwähnt ebenfalls 1981 kurz die Arbeiten SIMON, LEONE und GERWIG und bespricht die Arbeit /HOLUBAR/ (vergl.

3.2.5), zeigt ein Bild des betroffenen Fingers, (das nicht identisch mit dem Bild der HOLUBAR - Veröffentlichung ist,) und berichtet über weitere Messungen des zugehörigen Ringes. Er erwähnt ferner die Möglichkeit, daß Gold auch kontaminiert werden könne, wenn es längere Zeit zusammen mit Radium in einem Safe aufbewahrt werden würde.

3.2.11 Drei weitere Fälle (1983)

1983 beschreibt /LURIA/ aus dem Buffalo General Hospital Strahlungsdermatitiden aufgrund radioaktiven Schmucks:

"In den letzten Monaten wurden 3 Patienten im Alter von 47, 65 und 66 Jahren wegen chronischer Strahlendermatitis behandelt. Die Patienten hatten den angeschuldigten Schmuck zwischen 1936 und 1947 in New York gekauft und zwischen 15 Monaten und 18 Jahren getragen. Alle legten den Schmuck ab, nachdem sich ihre Haut änderte, austrocknete und blutete. Bei allen wurde biopsiert und die Diagnose festgestellt."

LURIA beschreibt nun klinisch die Strahlendermatitis: Eine akute Strahlendermatitis könne mit einer einzigen Dosis von 300 - 800 Rad erzeugt werden. Nach einer Symptombeschreibung folgen nun Therapievorschlage. LURIA geht von der Vorstellung aus, da radioaktives Gold Au^{198} , das durch Neutronenstrahlung aus naturlichem Gold entsteht, vorgelegen habe, obwohl er die Arbeit von /SIMON/ (vergl. 3.2.1) zitiert.

3.2.12 Nachuntersuchungen

STUTZMAN et al. stellten 1982 im Auftrag der Gesundheitsbehorde, der inzwischen uber 150 radioaktive Schmuckstucke im Westen N.Y. bekanntgeworden waren, eine Untersuchung daruber an, wie die Haut an der Kontaktstelle geschadigt wurde.

"Die Untersucher befragten und untersuchten 55 Personen, die ihre radioaktiven Goldringe der Gesundheitsbehörde gegeben hatten. Diese Zahl schloß 5 Personen ein, die einen Hautkrebs am Ringfinger hatten. Obwohl die Strahlenbelastung der Haut nur grob geschätzt wurde, bemerkten die Autoren, daß tendenziell die Hautschäden mit steigender Strahlenbelastung zunahmen. Fast das gesamte radioaktive Gold wurde im Westen von New York entdeckt, jedoch könnten auch ähnliche Verhältnisse in anderen Landesteilen, in denen Radonseeds aus Gold einmal produziert und zur Behandlung von Krebspatienten benutzt wurden, vorliegen."

Der Autor schließt mit einer genauen Beschreibung der Untersuchung.

3.2.13 Literaturberichte

/BAPTISTE/ veröffentlichte 1984 die Untersuchung von /STUTZMAN et al./ (vergl. 3.2.12). 1984 veröffentlicht /STUTZMAN/ einen reinen Literaturbericht über die Arbeiten von /SIMON/ (vergl. 3.2.1), /GERWIG/ (vergl. 3.2.3), /LEONE/ (vergl. 3.2.2), /BOGGS/ (vergl. 3.2.4), /JONES/ (vergl. 4.3.1) und /BAPTISTE/. Ferner fordert er auf, entsprechende Korrespondenz an G.D. SCHMIDT zu senden. 1985 schreibt die /MEDICAL TRIBUNE/ über die Arbeit von /LURIA/ (3.2.12) ebenfalls mit der Annahme daß Au^{198} die Ursache der Strahlung sei. /HACHENBURG/ berichtet in einer späteren Ausgabe den Sachverhalt und gibt einen kurzen Überblick über die bekannten Informationen.

4 Strahlenphysik der Seeds

4.1 Grundlagen der Radioaktivität

Das in der Natur in zahlreichen Stoffen, insbesondere Pechblende und Mineralien wie Monazitsand, häufig vorkommende Element Uran besteht zu mehr als 99% aus dem Isotop U^{238} . Dieses Isotop besitzt eine schwache Radioaktivität: mit einer Halbwertszeit von $4,51 \cdot 10^9$ Jahren wandelt es sich unter Aussendung eines α -Teilchens in Ra^{226} um. Dieses Radiumisotop zerfällt jedoch weiter, sodaß es üblich ist, von einer "Uran-Radium-Zerfallsreihe" zu sprechen; die Anzahl der Nukleonen läßt sich durch die Formel $4 \cdot n + 2$ beschreiben. Andere Zerfallsreihen sind die Aktinium-Reihe (Nukleonenzahl $4 \cdot n + 3$) und die Thorium-Reihe (Nukleonenzahl $4 \cdot n$).

Abb. 4.1

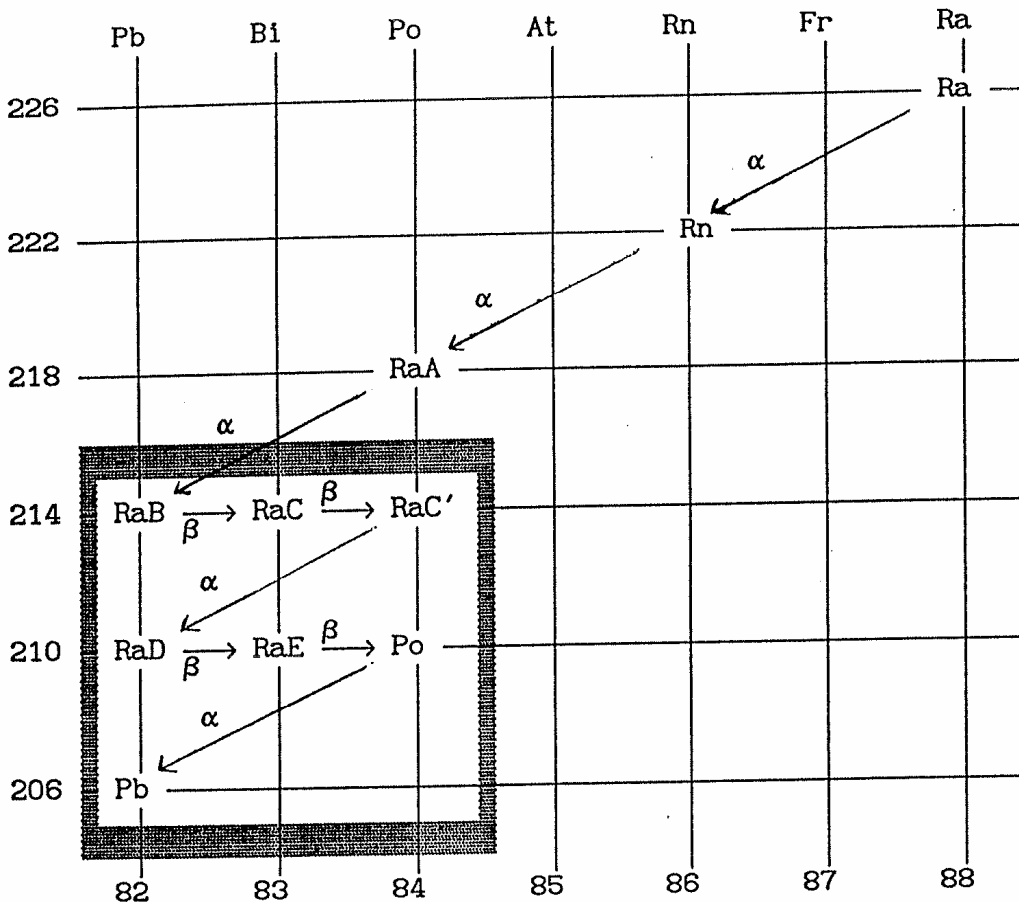


Abb. 4.1: Der Zerfall des Radium²²⁶. Auf der Ordinate ist das Atomgewicht, auf der Abszisse die Kernladungszahl aufgetragen. Der schraffierte Bereich umfaßt den für diese Arbeit wesentlichen Verlauf; näheres dazu im Text.

Abb. 4.1 zeigt die weiteren Stationen des Zerfalls des Ra²²⁶ bis zum stabilen(?) Blei mit dem Atomgewicht 206. Einige physikalische Daten und Elemente der Zerfallsreihe sind in Tab. 4.1 zusammengefaßt.

Tab. 4.1

HWZ (Handbook of Chemistry and Physics)				Emissionen		
Element		HWZ	$\lambda(\text{min}^{-1})$	α [MeV]	β [keV]	γ [keV]
Ra ²²⁶		1600 a	$823,2042 \cdot 10^{-12}$	4,78	-	186
Rn ²²²		3,82 d	$125,9096 \cdot 10^{-6}$	5,49	-	-
Po ²¹⁸	RaA	3,11 min	$227,2614 \cdot 10^{-3}$	6	-	-
Pb ²¹⁴	RaB	26,8 min	$25,8637 \cdot 10^{-3}$	-	0,7	-
Bi ²¹⁴	RaC	19,9 min	$34,8315 \cdot 10^{-3}$	-	1,5	-
Pb ²¹⁰	RaD	22,3 a	$64,6457 \cdot 10^{-9}$	-	17	47
Bi ²¹⁰	RaE	5,01 d	$96,0399 \cdot 10^{-6}$	-	1170	-
Po ²¹⁰	RaF	138,4 d	$3,4785 \cdot 10^{-6}$	5,3	-	800
Pb ²⁰⁶	RaG	s t a b i l				

Tab. 4.1: Zusammenstellung einiger physikalischer Daten der Uran-Radium-Zerfallsreihe, beginnend mit Radium²²⁶. Ein Radiumpräparat (z.B. in Form einer Radiumnadel) umfaßt alle Elemente in den Zeilen 1 - 3. Ein frisches Radon Seed (Alter unter einigen Wochen) enthält die Elemente der Zeilen 2 und 3. Nach etwa einem Monat ist die Aktivität des Radons soweit abgeklungen, daß sich in "alten" Radon Seeds die Elemente ab Zeile 3 befinden.

4.1.1 Radon²²²

Rn²²² gehört zur Uran-Radium-Zerfallsreihe mit der Nukleonenzahl $4n+2$. Es ist in dieser Reihe das einzige gasförmige Element. Da es etwa 15 % seiner Aktivität pro Tag bei einer mittleren Lebensdauer τ ($1/\lambda$ oder $1/e \approx 37\%$ der Ausgangsaktivität) von 132 d verliert, wurde es unter der Annahme, daß keine langfristige Strahlenwirkung zu erwarten sei, auf Dauer mit den Seeds implantiert. In der

frühen Literatur wird es häufig mit Radium Emanation bezeichnet. Weitere Daten siehe Tabelle.

4.1.2 Blei²¹⁴, Wismut²¹⁴

Die beiden Elemente sind die biologisch aktiven Strahler der frischen Radonseeds.

4.1.3 Blei²¹⁰

Pb²¹⁰, nach alter Bezeichnung RaD, ist mit einer HWZ von über 20 a verantwortlich für die Spätwirkungen der Radonseeds. Es emittiert weiche β -Strahlung, ebenso γ -Strahlen, die mit einem Szintillationszähler nachgewiesen werden können. /KASTNER/ zitiert SWANBERG, der es zusammen mit RaE in einem Applikator für ophthalmologische Zwecke verwendet.

Wie Abb.4.1 zeigt, entsteht beim Zerfall des Radium²²⁶ das Edelgas Radon mit dem Atomgewicht 222 als einziges gasförmiges Element in dieser Reihe. Radon²²² (auch als Radiumemanation bezeichnet) wird also ständig von jedem Radium²²⁶-Präparat gebildet; es kann aufgefangen und in Form von (verschlossenen) Seeds verwendet werden. Da durch die Wandung die α -Strahlung der Nuklide Rn²²² und Po²¹⁸ absorbiert wird, bleiben als biologisch wirksame Isotope der (frischen) Radonseeds die Elemente Pb²¹⁴ und Bi²¹⁴ übrig; vergl. Tab. 4.1. Nach 38 Tagen beträgt die Aktivität des Radonseeds nur noch etwa 1 Promille des Ausgangswertes; gemessen an dem Verwendungszweck sind sie daher als inaktiv zu betrachten. Aus diesem Grunde wurden die Gold Seeds häufig in situ belassen (vergl. Abschnitt 3). Eine genauere Betrachtung des Zerfallsschema (Abb. 4.1) bzw. der Tabelle (Tab. 4.1) zeigt jedoch, daß nunmehr Radioaktivität durch die Anwesenheit des vergleichsweise langlebigen (20,4 Jahre) Radionuklids Pb²¹⁰ vorliegt. Dieses Radionuklid verursacht zusammen mit seinen Folgeprodukten die Radioaktivität alter Gold Seeds; Einzelheiten zu ihrem Zerfall sind im nächsten Abschnitt zusammengestellt.

4.2 Zusammenstellung der Emissionen alter Radon Seeds

Die verschiedenen Strahlungsarten aus alten Radonseeds werden im folgenden aufgrund der vorhandenen Literatur beschrieben.

4.2.1 Direkte Strahlung

4.2.1.1 β -Strahlung

Nach /JONES/ werden in alten Radonseeds β -Strahlen von Pb^{210} und Bi^{210} abgegeben. Ebenso werden von den γ -Strahlen Photoelektronen erzeugt.

4.2.1.2 γ -Strahlung

γ -Strahlung wird von RaD (0,0467 MeV) und RaF (0,8 MeV) (nach KINSMAN; wird bei JONES nicht berücksichtigt!) abgegeben. Die Strahlung wird zum größten Teil intern in Photoelektronen mit einer Energie von 0,04 MeV (/JONES/) umgewandelt.

4.2.2 sekundär auftretende Strahlung

4.2.2.1 Bremsstrahlung

In alten Radonseeds werden β -Partikel in der Goldhülle abgebremst und verursachen Bremsstrahlung /JOHNS/. Die Energie E_γ , die pro β -Partikel abgestrahlt wird, beträgt:

$$E_\gamma = 1,23 \times 10^{-4} (Z + 3) E_\beta^2;$$

in MeV, wobei E_β die größte Energie des β -Partikels ist (ebenfalls in MeV nach /WYARD/ zit. bei /JOHNS/). Die Intensität der ungefilterten Bremsstrahlung hat ihr Maximum nahe 0 MeV, fällt kontinuierlich ab und erreicht bei der maximalen Energie des auslösenden β -Partikels das 0-Niveau.

4.2.2.2 Charakteristische Strahlung

Bei etwa 80,7 keV jedoch werden aus der K-Schale des Goldes Elektronen entfernt, sodaß durch Wiederauffüllen K-Strahlung bei

etwa 70 keV emittiert wird (/JOHNS/); es liegt somit ein "Fenster" beim absorbierenden Gold bei etwa dieser Energie vor. Der gleiche Vorgang findet in der L-Schale des Goldes statt, die bei 10 keV Röntgenstrahlung emittiert (/JONES/).

4.3 Aktivitätsverlauf und Dosimetrie

4.3.1 Messungen

/HELM/ berichtet 1974 über Messungen des Ringes der /HOLUBAR/-Veröffentlichung (vergl. 3.2.5):

"Ein Geiger-Müller-Zählrohr registrierte Aktivität, wogegen ein NaJ-Kristall mit einem Multikanalanalysator keine γ -Strahlung registrierte. Nach monatelangen Messungen konnte kein Abfall der Strahlung entdeckt werden. Die vermuteten β -Strahlen des Ringes wurden mit der Reichweite eines Standardisotops (Cs^{137}) verglichen, indem Aluminiumabsorber wachsender Dicke zwischen Ringe und Meßgerät angeordnet wurden ("feather analysis"). Diese Methode ergab eine maximale β -Reichweite von $468 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$ und eine maximale Energie von 1,05 MeV. Ein 24h Kontakt mit einem Röntgenfilm in der Dunkelkammer zeigte über dem gesamten Ring Aktivität. Bei genauer Betrachtung konnte auf beiden Seiten des Ringbandes eine feine Linie gesehen werden: das Originalband war offensichtlich mit radioaktiv kontaminiertem Gold überzogen worden. Für die betroffene Hautfläche (etwa 3 cm^2) wurde die Dosisrate auf $8,3 \frac{\text{rd cm}^2}{\text{mCi h}}$ [$0,623 \frac{\text{nGy cm}^2}{\text{kBq s}}$] berechnet bei einer Absorption von $7 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$. Die Gesamtdosis über 30 Jahre hinweg (Tragezeit des Rings) ergab 57,5 krd [575 Gy]. Nach Korrektur der Zählhausbeute von 1,5% wurden 180000 Zerfällen pro min festgestellt."

HELM erwähnt zwei andere nicht benutzte Analyseverfahren: Die Aktivierungsanalyse (durch Beschuß einer Ringstelle mit Atomkernen) und die Atomabsorption, die dem Autor nicht erhältliche leichte Quellen benötigt.

/GOLDSTEIN/ erwähnt in seiner Fallbeschreibung (3.1.5) eine Messung alter Seeds mit einer "Ionisationskammer mit einem Berylliumfenster".

/JOHNS/ berichtet über Messungen alter Seeds (aus Fall 2 in 3.1.2):

"5 verbrauchte Radonseeds mit einer Anfangsaktivität von je 1,13 mCi [41,8 MBq] (im Jahre 1933) wurden entnommen und im Dezember 1958 gemessen. Bei etwa 80 keV (und 167 keV) befinden sich peaks, die der K-Strahlung des Goldes entsprechen."

Es folgt eine Beschreibung der Meßanordnung, eine Meßtabelle und eine graphische Auswertung. Es werden 100 bis 300 rad [1-3Gy] Strahlung über einen Zeitraum von 20 Jahren geschätzt, die zwar nicht sehr beeindruckend ("*...and probably does not have too much significance*") seien, jedoch als Ursache einer chronischen Reizung auch nicht ausgeschlossen werden können.

1968 beschreibt /JONES/ Messungen und Berechnungen über die Strahlenbelastung der von /SIMON/ veröffentlichten Fälle (vergl. 3.2.1).

"Die Strahlen stammen von RaD (Pb^{210}) und RaE (Bi^{210}), die β -Partikel von 0,017, 0,061 und 1,17 MeV Energiemaximum emittieren. Diese Energien entsprechen Bereichen von 0,5, 6 und 500 mg/cm^2 . Die 0,047 MeV γ -Strahlung des RaD (Pb^{210}) wird intern fast vollständig zu Elektronen mit 0,04 MeV umgewandelt. Die emittierten β -Partikel erzeugen mit dem Gold Bremsstrahlung bis zur maximalen β -Strahlungsenergie. Charakteristische Röntgenstrahlung wird ebenfalls vom Gold erzeugt, hauptsächlich von der K-Schale mit einer Energie von 70 keV, aber auch von der L-Schale mit 10 keV. Ebenso entstehen auch Photoelektronen als Bestandteil der Strahlung. Das Dosimetrieproblem besteht in der Messung der maximalen Strahlenbelastung der Haut und des Knochens. Der Knochen wird

von den 0,047 MeV γ -Strahlen, den charakteristischen Röntgenstrahlen und der Bremsstrahlung erreicht. Es ist zu erwarten, daß die Knochenbelastung einige Größenordnungen unter der Hautbelastung liegt. Als kritische Belastung der Haut wird die Basalzellschicht angesehen, die als dünne Schicht von etwa 7 mg/cm^2 angenommen wird. Die 0,017 und 0,061 MeV Strahlung liefert in dieser Tiefe keinen Beitrag zur Gesamtstrahlung mehr, ebensowenig Konversions- und Photoelektronen. Die biologisch wichtigen Komponenten sind die 1,17 MeV β -Strahlung und in kleinerem Ausmaß die Photonen."

/JONES/ hatte die beiden Ringe der Patienten und den "Memorial Hospital Ring", die in dem Bericht von /SIMON/ (vergl. 3.2.1) erwähnt werden, zur Verfügung. Er beschreibt das angewandte Meßverfahren (Phosphor-Teflon Thermoluminescent Dosimeter, das mit Co^{60} - γ -Strahlen kalibriert wurde):

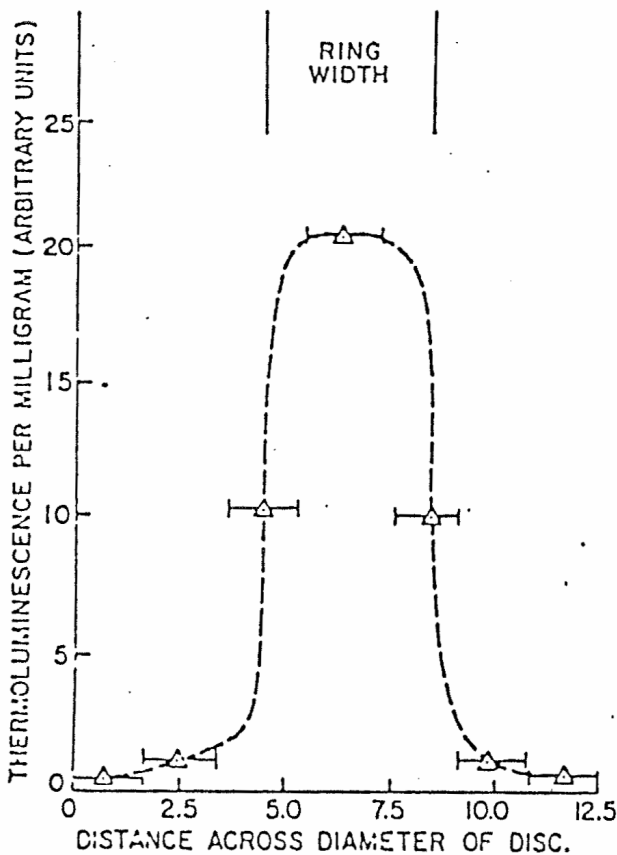


FIG. 2.

The dose distribution across the surface LiF-Teflon discs, in contact with ring C.

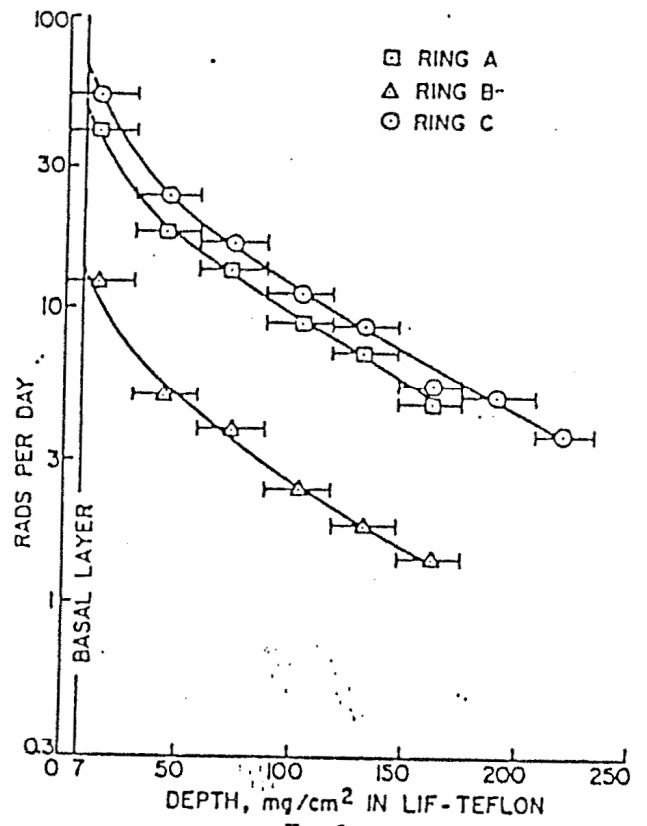


FIG. 3.

The depth dose-rate distribution beneath the gold rings.

Abb. 4.1 Gemessene Tiefendosisleistung einiger kontaminierter Goldringe sowie die räumliche Strahlenverteilung. (Jones 1968)

"Die Ringe wurden jeweils 3 Tage auf einen "Phantomfinger" gesteckt. Eine Graphik (Abb. 4.1) zeigt die Dosisverteilung. Die Ringe ergaben Strahlungsleistungen von 40, 12 und 60 rd/d [4,63 1,39 6,94 μ Gy/s] auf den Abstand der Basalzellschicht extrapoliert. Das kontinuierliche β -Spektrum wird nahezu unabhängig von der Massenzahl des Absorbers geschwächt, sodaß nur die geometrischen Abmessungen das Ergebnis wesentlich beeinflussen. Der Knochen wird etwa daher nur mit etwa 10 mrd/d [1,16 nGy/s] belastet, wodurch die geringere klinische Auffälligkeit erklärt wird."

Ein anderes Meßverfahren wird von /FAILLA/ angegeben, mit dem er ohne Tierversuche biologische Wirksamkeit nachweist: Er benutzt die bleichende Wirkung der Strahlung auf gewöhnliche Butter, eine Methode, die im Labor seines Hauses von /SUGIURA/ gefunden wurde:

"Ein auf Eis gelegter Block Butter zeigt einen im Verlauf einiger Tage anwachsenden scharf begrenzten gebleichten Bezirk in der unmittelbaren Umgebung eines Radonseeds. Die Größe des Bereichs ist von der Stärke und der Filterung der Strahlung abhängig. Nach dem etwa achten Tag verläuft das weitere Wachstum der Bleichungszone bei verschiedenen Strahlungen parallel. Der relative Unterschied bleibt ab diesem Zeitpunkt etwa gleich.

Eine weitere Meßmethode der biologischen Wirksamkeit stellt nach /FAILLA/ das Ausmessen der Nekrosezone um das in den Rückenmuskel eines Kaninchens implantierte Seed nach einer bestimmten Zeit dar.

4.3.2 Berechnungen

JOHNS gibt die durchschnittliche Energie der Bremsstrahlung eines gebremsten β -Partikels (Formel zitiert nach WYARD) mit

$$E_{\gamma} = 1,23 \cdot 10^{-4} (Z+3) E_{\beta}^2$$

wobei E_{β} die maximale Energie des β -Teilchen und Z Ordnungszahl des bremsenden Atoms ist, an. Für Pb^{210} errechnet er $E_{\gamma} = 2,74 \text{ MeV/s}$ pro anfänglichem mCi Rn [7,4 MeV/s pro MBq Rn] bei einem Spektrum von 50 bis 500 keV. Über diesen Bereich sei der Energiefluß pro Röntgen etwa $3000 \text{ erg}/(\text{cm}^2 \cdot \text{r})$. Daher könne eine Strahlungsdosis von 0,37 rd/a [0,116 nGy/s] in einem Abstand von 1 cm von einer Quelle mit der Ausgangsaktivität von 1 mCi angenommen werden [$\approx 3 \mu\text{Gy/s}$ pro 1 MBq]. 1 mCi Rn strahle in 1 cm Abstand 8,25 rd/h [22,9 $\mu\text{Gy/s}$] [$\approx 0,62 \mu\text{Gy/s}$ je 1 MBq Rn]. Die Aktivität eines "verbrauchten" Seeds sinke also auf $2 \cdot 10^5$ des Ausgangswerts ab. Da aber die Halbwertszeit um den Faktor 1850 größer sei, dürfe die integrierte Dosis über die Zeit nur etwa um den Faktor 100 geringer angenommen werden. Filtereffekte seien dabei nicht berücksichtigt.

4.3.3 Eigene Berechnungen

4.3.3.1 Zeitlicher Verlauf der Folgeaktivitäten

1. Es sei A_0 die Aktivität eines Radionuklids zum Zeitpunkt $t=0$ und λ seine Zerfallsgeschwindigkeit. Dann ist die Anzahl N der Atomkerne dieses Präparats gegeben durch:

$$N = A_0 \int_0^{\infty} e^{-\lambda t} dt = \frac{A_0}{\lambda}$$

oder, mit $T_{\text{HWZ}} = \frac{\ln 2}{\lambda}$:

$$N = A_0 \frac{\text{HWZ}}{\ln 2}$$

wobei A_0 die Aktivität in s^{-1} und HWZ die Halbwertszeit ist. Bei einer HWZ des Rn^{222} von 3,82 Tagen folgt für die spezifische Anzahl (bezogen auf 1 mCi):

$$\frac{N}{A_0} = \frac{3,7 \cdot 10^7 [\text{Atome}] \cdot 3,82 \cdot 24 \cdot 3600 [\text{sek}]}{[\text{mCi} \cdot \text{sek}] \cdot \ln 2} = 17,6 \cdot 10^{12} \frac{\text{Atome}}{\text{mCi}}$$

Nach /LIESER/ (dort Gleichung 5.18) ist die Masse $m = \frac{N \cdot M}{N_L}$;
mit M als relative Atommasse und N_L als Loschmidtsche Zahl:

$$m = \frac{17,6 \cdot 10^{12} [\text{Atome}] \cdot 222 [\text{Mol}]}{[\text{mCi}] \cdot 6,02 \cdot 10^{23} [\text{Atome}]} = 6,5 \text{ ng} \frac{\text{Rn}}{\text{mCi}}$$

In einem Goldseed befinden sich also pro mCi Anfangsaktivität 6,5 ng Rn. Da ein ideales Gas bei 0°C und 1000 mbar ein Volumen von 22,4 l besitzt, nimmt das Rn unter diesen Bedingungen ein Volumen von

$$V \approx 22,4 \text{ l} \cdot \frac{N}{N_L} = \frac{22,4 [\text{l}] \cdot 17,6 \cdot 10^{12} [\text{Atome}]}{6,02 \cdot 10^{23} [\text{Atome/Mol}] [\text{mCi}]} = 6,02 \cdot 10^{23} = 655 \frac{\text{pl}}{\text{mCi}}$$

ein. Nach /BOGGS/ hat ein Goldseed einen Außendurchmesser von 0,75 mm, eine Wanddicke von 0,3 mm und eine Länge von 4 mm. Daraus ergibt sich ein Innenvolumen von 70,86 nl, also ein etwa 100-fach größeres Volumen als vom Radon benötigt.

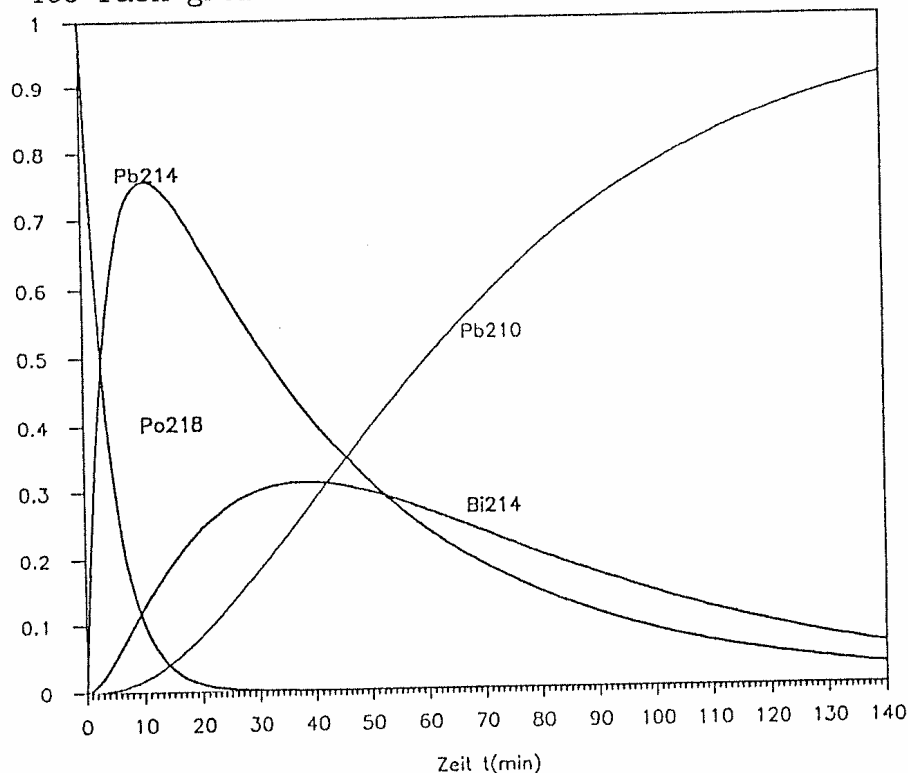


Abb. 4.2 Zerfall des Po^{218} und der Folgeprodukte

Die folgenden 8 Formeln beschreiben die Bildung und den Zerfall von 7 Tochtersubstanzen als Funktion der Mutter. (Formeln nach /LIESER/):

$$N_1 = N_1^0 \cdot e^{-\lambda_1 t}; \quad N_2 = \frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \cdot N_1^0 \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right];$$

$$N_3 = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_1 - \lambda_3)} \right];$$

$$N_4 = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \cdot N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)} \right];$$

$$N_5 = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \cdot \lambda_4 \cdot N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_5 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_5 - \lambda_4)} + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{(\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_2 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_4 - \lambda_5)} \right];$$

$$N_6 = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \cdot \lambda_4 \cdot \lambda_5 \cdot N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1)(\lambda_6 - \lambda_1)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_5 - \lambda_2)(\lambda_6 - \lambda_2)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3)(\lambda_6 - \lambda_3)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_6 - \lambda_4)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{(\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_2 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_4 - \lambda_5)(\lambda_6 - \lambda_5)} \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_6 t}}{(\lambda_1 - \lambda_6)(\lambda_2 - \lambda_6)(\lambda_3 - \lambda_6)(\lambda_4 - \lambda_6)(\lambda_5 - \lambda_6)} \right];$$

$$\begin{aligned}
 N_7 = & \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \cdot \lambda_4 \cdot \lambda_5 \cdot \lambda_6 \cdot N_1^0 \\
 & \cdot \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1)(\lambda_6 - \lambda_1)(\lambda_7 - \lambda_1)} \right. \\
 & + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_5 - \lambda_2)(\lambda_6 - \lambda_2)(\lambda_7 - \lambda_2)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3)(\lambda_6 - \lambda_3)(\lambda_7 - \lambda_3)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_6 - \lambda_4)(\lambda_7 - \lambda_4)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{(\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_2 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_4 - \lambda_5)(\lambda_6 - \lambda_5)(\lambda_7 - \lambda_5)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_6 t}}{(\lambda_1 - \lambda_6)(\lambda_2 - \lambda_6)(\lambda_3 - \lambda_6)(\lambda_4 - \lambda_6)(\lambda_5 - \lambda_6)(\lambda_7 - \lambda_6)} \\
 & \left. + \frac{e^{-\lambda_7 t}}{(\lambda_1 - \lambda_7)(\lambda_2 - \lambda_7)(\lambda_3 - \lambda_7)(\lambda_4 - \lambda_7)(\lambda_5 - \lambda_7)(\lambda_6 - \lambda_7)} \right];
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 N_8 = & \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \cdot \lambda_4 \cdot \lambda_5 \cdot \lambda_6 \cdot \lambda_7 \cdot N_1^0 \\
 & \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1)(\lambda_6 - \lambda_1)(\lambda_7 - \lambda_1)(\lambda_8 - \lambda_1)} \right. \\
 & + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_5 - \lambda_2)(\lambda_6 - \lambda_2)(\lambda_7 - \lambda_2)(\lambda_8 - \lambda_2)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3)(\lambda_6 - \lambda_3)(\lambda_7 - \lambda_3)(\lambda_8 - \lambda_3)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_1 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4)(\lambda_5 - \lambda_4)(\lambda_6 - \lambda_4)(\lambda_7 - \lambda_4)(\lambda_8 - \lambda_4)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{(\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_2 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_4 - \lambda_5)(\lambda_6 - \lambda_5)(\lambda_7 - \lambda_5)(\lambda_8 - \lambda_5)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_6 t}}{(\lambda_1 - \lambda_6)(\lambda_2 - \lambda_6)(\lambda_3 - \lambda_6)(\lambda_4 - \lambda_6)(\lambda_5 - \lambda_6)(\lambda_7 - \lambda_6)(\lambda_8 - \lambda_6)} \\
 & + \frac{e^{-\lambda_7 t}}{(\lambda_1 - \lambda_7)(\lambda_2 - \lambda_7)(\lambda_3 - \lambda_7)(\lambda_4 - \lambda_7)(\lambda_5 - \lambda_7)(\lambda_6 - \lambda_7)(\lambda_8 - \lambda_7)} \\
 & \left. + \frac{e^{-\lambda_8 t}}{(\lambda_1 - \lambda_8)(\lambda_2 - \lambda_8)(\lambda_3 - \lambda_8)(\lambda_4 - \lambda_8)(\lambda_5 - \lambda_8)(\lambda_6 - \lambda_8)(\lambda_7 - \lambda_8)} \right];
 \end{aligned}$$

Durch Einsetzen der λ -Werte aus der Tabelle 4.1 ergibt sich folgende Beschreibung der Zerfallsreihe von Po^{218} nach Pb^{210} (Zeit t in [min]):

$$\left[\text{Po}^{218} \right] \quad N_1 = N_1^0 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t}$$

$$\left[\text{Pb}^{214} \right] \quad N_2 = -1,128421 \cdot N_1^0 \left[e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} - e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} \right];$$

$$\left[\text{Bi}^{214} \right] \quad N_3 = 0,0258637 \cdot N_1^0 \left[25,803 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} + 553,68 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} - 578,483 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \right];$$

$$\left[\text{Pb}^{210} \right] \quad N_4 = 0,0002047 \cdot N_1^0 \left[-113,5397 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} - 2107,664 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} + 16636,78 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} + 4884,4238 \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} \right];$$

Entsprechend ergibt sich die Zerfallsreihe von Rn^{222} nach Pb^{206} :

$$\left[\text{Rn}^{222} \right] \quad N_1 = N_1^0 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t}$$

$$\left[\text{Po}^{218} \right] \quad N_2 = 554,337 \cdot 10^{-6} \cdot N_1^0 \left[e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} - e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \right];$$

$$\left[\text{Pb}^{214} \right] \quad N_3 = 28,614 \cdot 10^{-6} \cdot N_1^0 \left[171,06 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} + 21,86 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} - 192,92 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} \right];$$

$$\left[\text{Bi}^{214} \right] \quad N_4 = 740 \cdot 10^{-9} \cdot N_1^0 \left[4929 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} - 113,6 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} - 21512 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} + 16697 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \right];$$

$$\left[\text{Pb}^{210} \right] \quad N_5 = 25,8 \cdot 10^{-9} \cdot N_1^0 \left[-39,166 \cdot 10^6 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} + 499,88 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} + 831760 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} - 479369 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} + 38,813 \cdot 10^6 \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} \right];$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Bi}^{210} \right] \quad N_6 = & 1,666 \cdot 10^{-15} \cdot N_1^0 \left[1,311 \cdot 10^{12} \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} \right. \\ & - 2,2 \cdot 10^3 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} - 32,28 \cdot 10^6 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} \\ & + 13,8 \cdot 10^6 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} + 404,4 \cdot 10^9 \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} \\ & \left. - 1,7156 \cdot 10^{12} \cdot e^{-96,04 \cdot 10^{-6} t} \right]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Po}^{210} \right] \quad N_7 = & 160 \cdot 10^{-21} N_1^0 \left[- 10,71 \cdot 10^{15} \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} \right. \\ & + 9,683 \cdot 10^3 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} + 1,248 \cdot 10^9 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} \\ & - 396,25 \cdot 10^6 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} + 118,46 \cdot 10^{15} \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} \\ & \left. + 18,535 \cdot 10^{15} \cdot e^{-96,04 \cdot 10^{-6} t} - 126,29 \cdot 10^{15} \cdot e^{-3,478 \cdot 10^{-6} t} \right]; \end{aligned}$$

Es folgt die Zerfallsreihe von Ra^{226} nach Pb^{206} :

$$\left[\text{Ra}^{226} \right] \quad N_1 = N_1^0 \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t};$$

$$\left[\text{Rn}^{222} \right] \quad N_2 = 6,5381 \cdot 10^{-6} \cdot N_1^0 \left[e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} - e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} \right];$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Po}^{218} \right] \quad N_3 = & 103,65 \cdot 10^{-15} \cdot N_1^0 \left[34,9477 \cdot 10^3 \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right. \\ & \left. - 34,967 \cdot 10^3 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} - 4,4 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \right]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Pb}^{214} \right] \quad N_4 = & 23,555 \cdot 10^{-15} \cdot N_1^0 \left[1,3512 \cdot 10^6 \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right. \\ & - 1,3586 \cdot 10^6 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} + 21,8484 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \\ & \left. + 7,459 \cdot 10^3 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} \right]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Bi}^{214} \right] \quad N_5 = & 609,2318 \cdot 10^{-18} \cdot N_1^0 \left[38,7932 \cdot 10^6 \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right. \\ & - 39,146 \cdot 10^6 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} - 113,5396 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \\ & \left. + 831,758 \cdot 10^3 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} - 479,368 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \right]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left[\text{Pb}^{210} \right] \quad N_6 = & 21,2205 \cdot 10^{-18} \cdot N_1^0 \left[607,829 \cdot 10^{12} \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right. \\ & + 311,066 \cdot 10^9 \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} + 499,6 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \\ & - 32,16 \cdot 10^6 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} + 13,7625 \cdot 10^6 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \\ & \left. - 608,14 \cdot 10^{12} \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} \right]; \end{aligned}$$

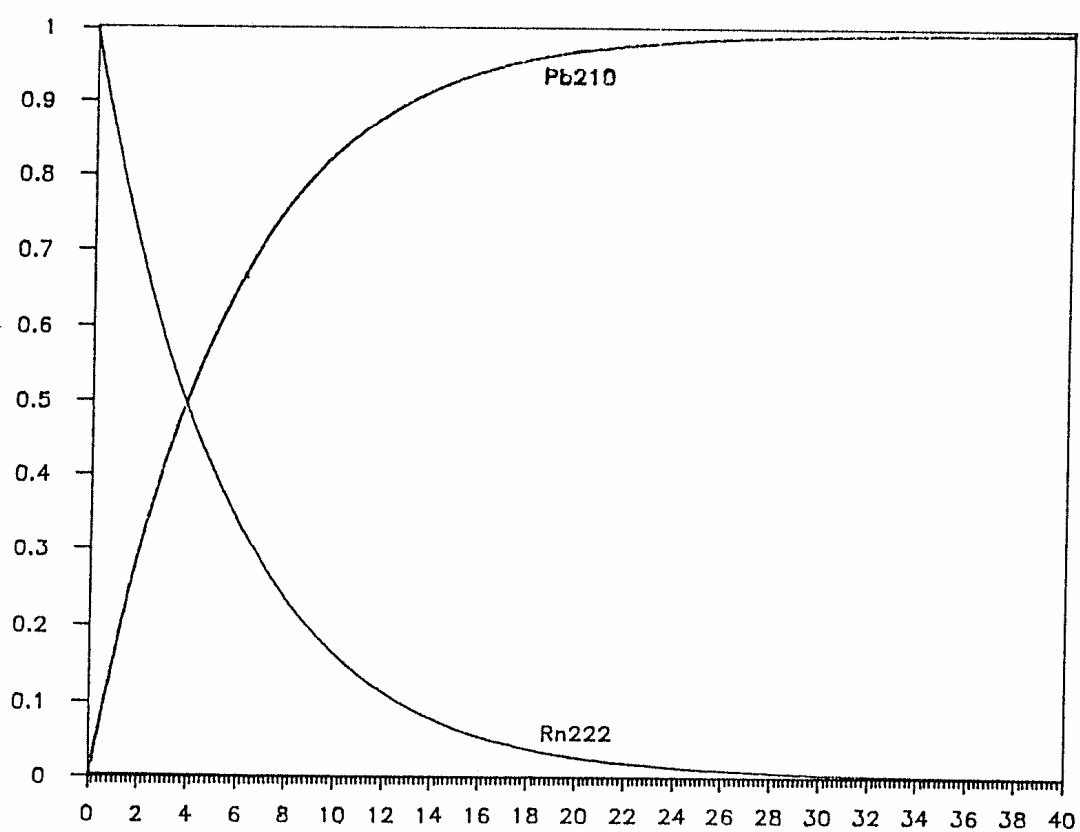
$$\left[\text{Bi}^{210} \right] \quad N_7 = 1,371813 \cdot 10^{-24} \cdot N_1^0 \left[6,329 \cdot 10^{18} \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right.$$

$$\begin{aligned}
 & - 10,4141 \cdot 10^{15} \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} + 9,6827 \cdot 10^3 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \\
 & + 1,248 \cdot 10^9 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} - 396,2 \cdot 10^6 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \\
 & - 6,336 \cdot 10^{18} \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} + 17,864 \cdot 10^{15} \cdot e^{-96,04 \cdot 10^{-6} t} \Big\};
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \left[\text{Po}^{210} \right] N_8 = & 131,7488 \cdot 10^{-30} \cdot N_1^0 \left[1,82 \cdot 10^{24} \cdot e^{-823,2 \cdot 10^{-12} t} \right. \\
 & + 85,06 \cdot 10^{18} \cdot e^{-125,91 \cdot 10^{-6} t} - 42,6 \cdot 10^3 \cdot e^{-227,26 \cdot 10^{-3} t} \\
 & - 48,26 \cdot 10^9 \cdot e^{-25,8637 \cdot 10^{-3} t} + 11,376 \cdot 10^9 \cdot e^{-34,83 \cdot 10^{-3} t} \\
 & - 1,8561 \cdot 10^{24} \cdot e^{-64,65 \cdot 10^{-9} t} - 193 \cdot 10^{18} \cdot e^{-96,04 \cdot 10^{-6} t} \\
 & \left. + 36,3135 \cdot 10^{21} \cdot e^{-3,478 \cdot 10^{-6} t} \right];
 \end{aligned}$$

4.3.3.2 Graphische Darstellungen

Radonzerfall und Bleiaufbau im Zeitraum des ersten Monats



Zeit t [d]

Abb. 4.3

Die Abb.4.3 zeigt das zeitliche Verhalten des isolierten Rn^{222} wie es in den Radonseeds vorliegt, wobei die Ordinate $N(t)$ die Anzahl der Zerfälle mit $N_{t=0} = 1$ eine relative Größe darstellt. Nach einer Frühphase von etwa einem Monat ist der größte Teil des Radons bereits zu dem langlebigen Pb^{210} umgewandelt.

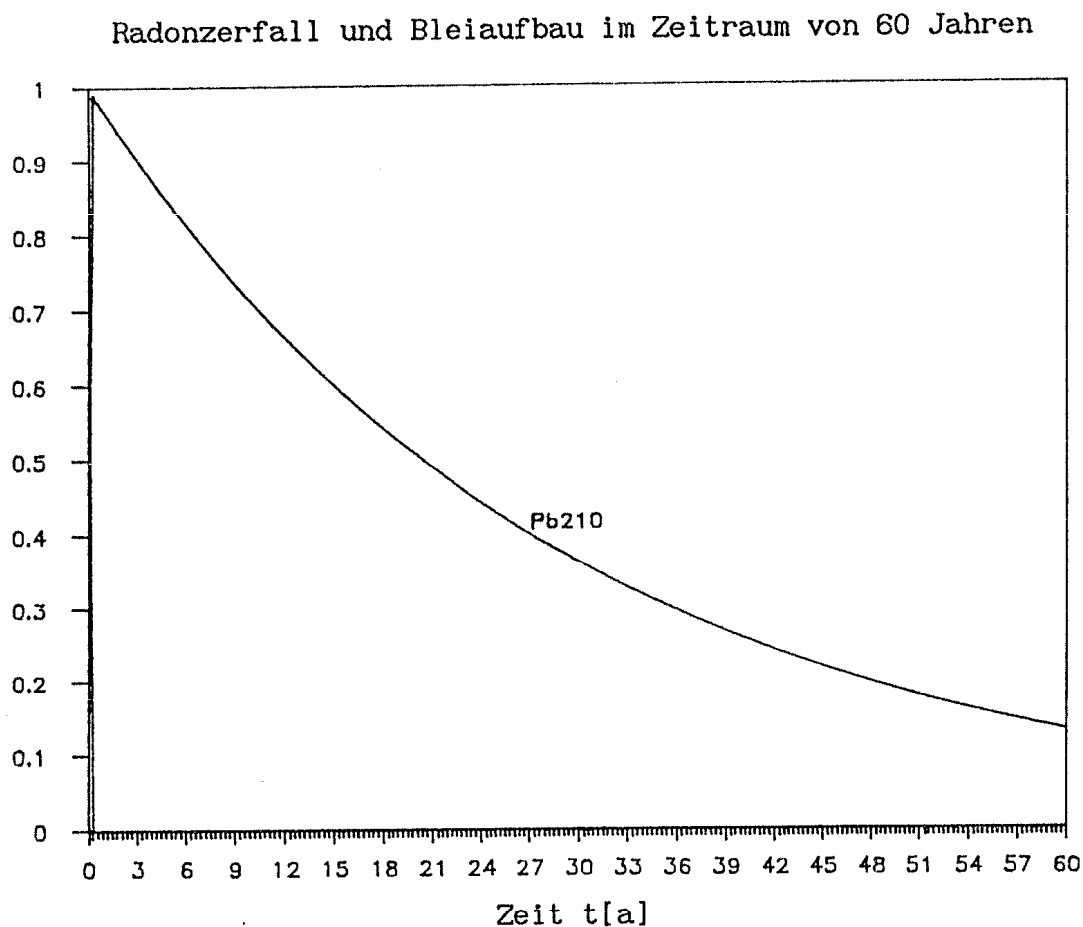


Abb. 4.4

Bei einer Zeitachse von 60 Jahren kann das Verhalten des Radon nicht dargestellt werden, so daß nur der Zerfall des Pb^{210} mit der HWZ von etwa 20 Jahren zu sehen ist.

Die folgende Abb. 4.5 zeigt auf einer logarithmischen Zeit- und einer linearen Zerfallsachse den Verlauf vom Rn^{222} über Pb^{210} das Entstehen des stabilen Endprodukts Pb^{206} in einem Zeitraum von 230 Jahren. Weitere Zwischenprodukte sind wegen deren geringer Konzentration aufgrund ihrer kurzen Halbwertzeit hier nicht darstellbar.

Radonzerfall und Bleiaufbau im Zeitraum von 3 min bis 230 Jahre

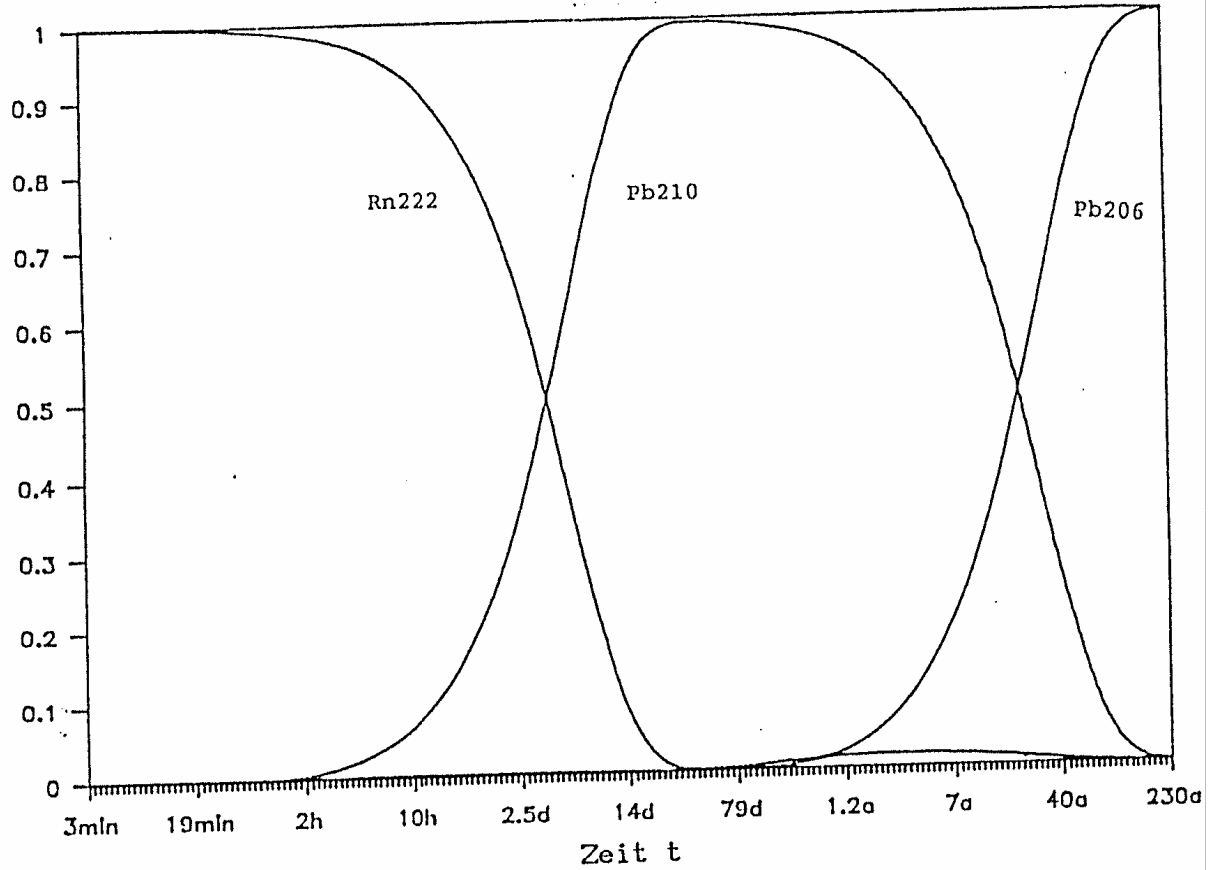


Abb. 4.5

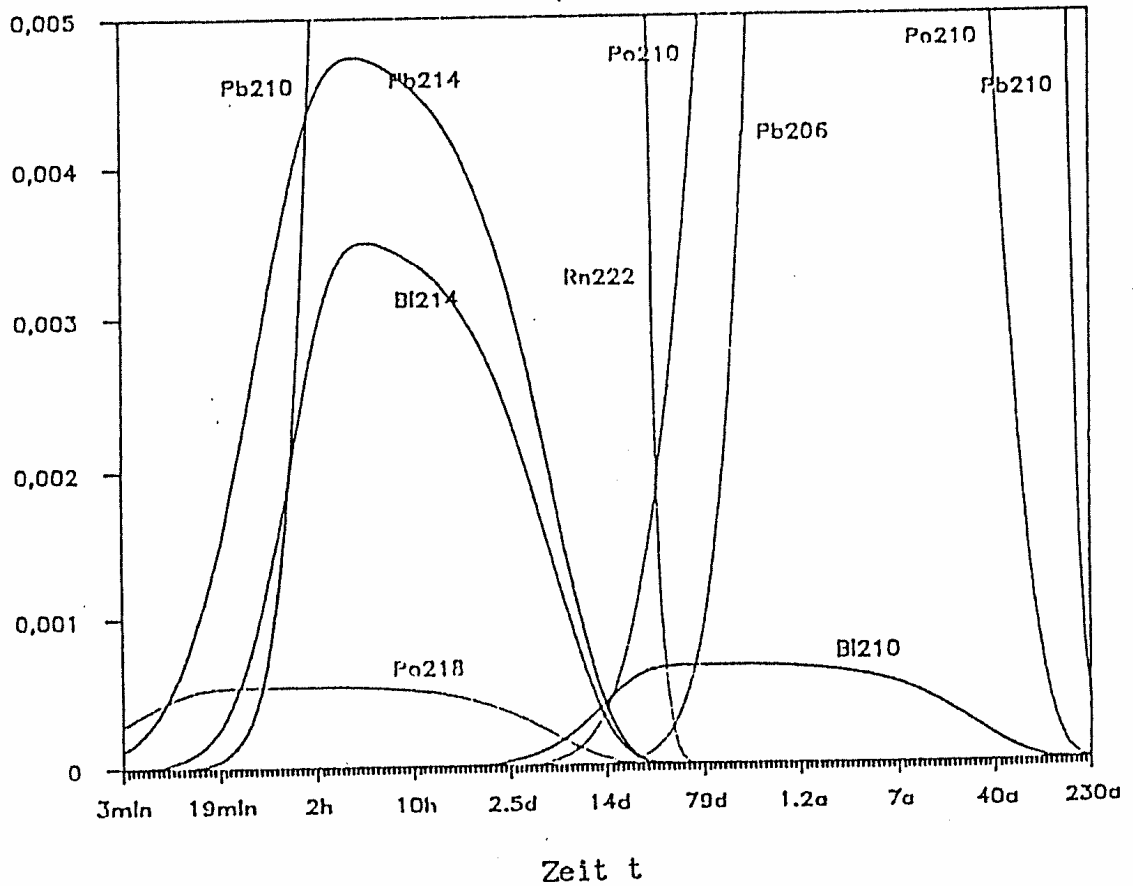


Abb. 4.6

Um die restlichen Zwischenprodukte, die in Abb. 4.5 nicht dargestellt sind, zu zeigen, wurde die gleichen Graphen in der Abb. 7 mit einer Intensitätsbereich von 0 bis 0,005 dargestellt.

Radonzerfall und Bleiaufbau im Zeitraum von 3 min bis 230 Jahre

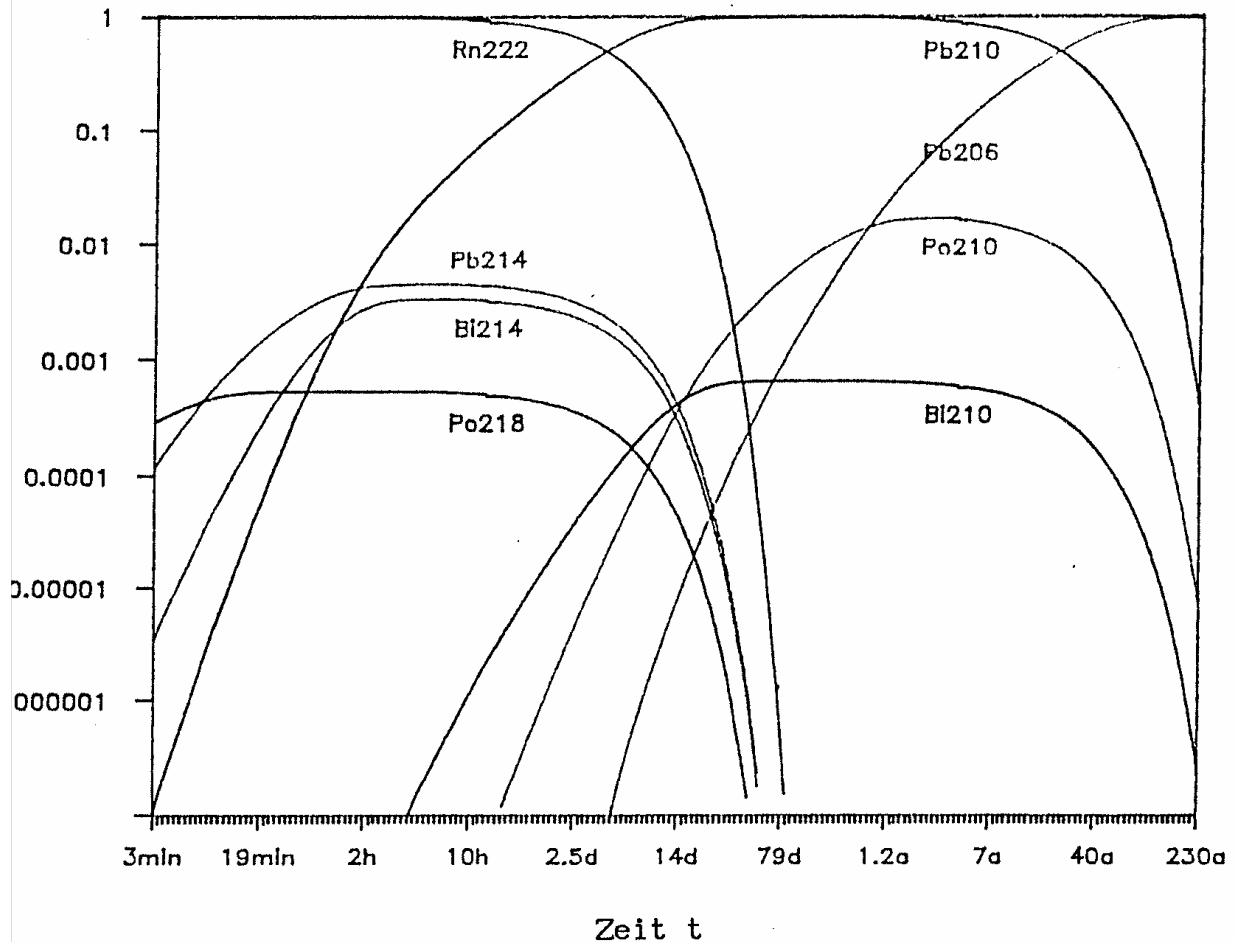


Abb. 4.7

In Abb. 4.7 liegt eine doppelt logarithmische Skalierung vor, so daß das Verhalten aller beteiligten Elemente über den gesamten Zeitraum zu sehen ist.

Abb.4.8 zeigt das Verhältnis der Tochterelemente unter der Annahme, daß Ra^{226} am Anfang der Reihe steht. Aufgrund der sehr langen HWZ des Radium befinden sich die Tochterelemente nach etwas mehr als 100 Jahren mit dem Ausgangselement in einem transienten Gleichgewicht und deren Aktivitäten liegen einige Zehnerpotenzen unter der des Radium.

Radiumzerfallsprodukte

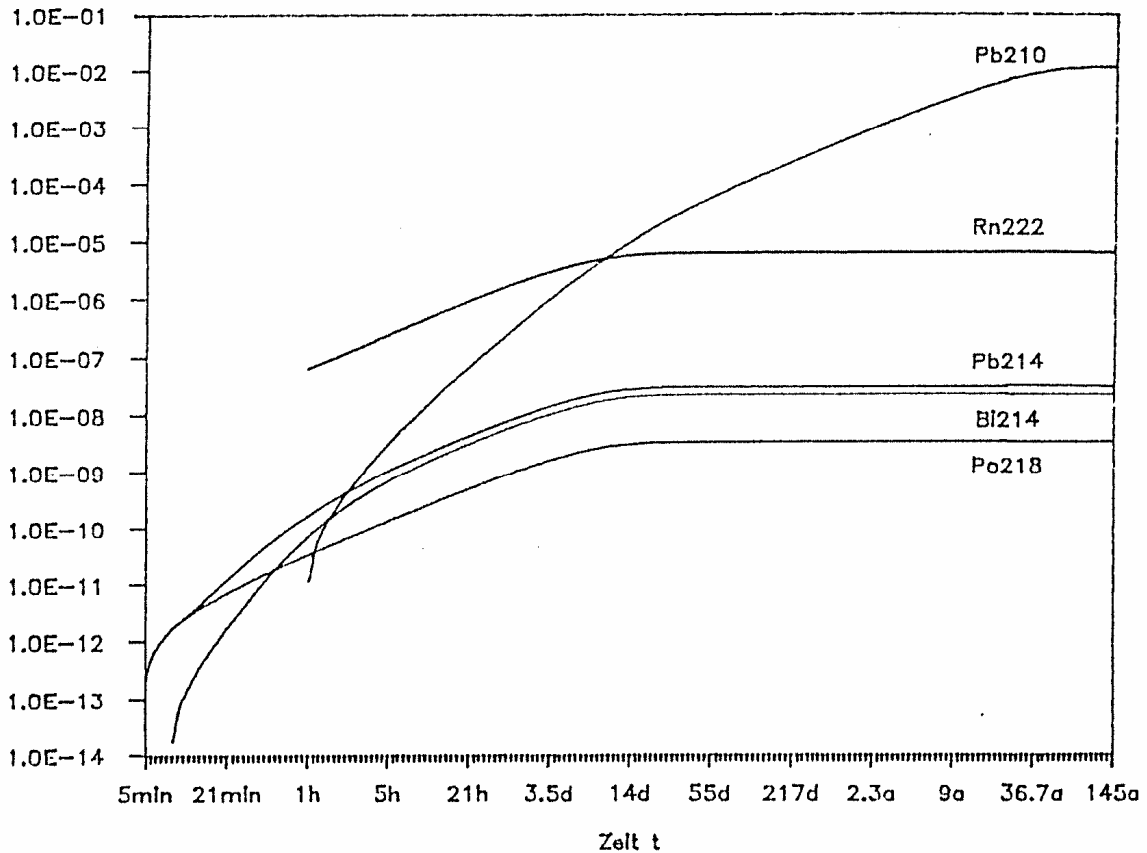


Abb. 4.8

4.3.3.3 Erläuterungen zu den graphischen Darstellungen

Die graphischen Darstellungen wurden mit LOTUS 123 und SYMPHONY auf einem IBM-PC gewonnen. Die Parameterwerte der Gleichungen wurden aus Genauigkeits- und Speicherplatzgründen mit einem Taschenrechner (TI-59) erstellt. Die Abb. 4.1 ist mehr als ein Test der verwendeten Formeln von /BATEMAN/ und den aus den Halbwertzeiten errechneten Zerfallskonstanten anzusehen. Der Graph wurde bereits 1930 von /RUTHERFORD/ (zitiert bei /LIESER/ 1969,p.139) veröffentlicht. Diese Abbildung zeigt den zeitlichen Verlauf des Po^{218} -Zerfalls und das davon abhängige Verhalten der Folgeprodukte Pb^{214} , Bi^{214} und Pb^{210} in Abhängigkeit einer isolierten Menge Po^{218} zum Zeitpunkt $t = 0$ min. Die x-Achse wurde durch einfaches Aufaddieren von jeweils +1 zum Wert des Vorgängers

von 0 bis 140 erzeugt. Die Werte der einzelnen Graphen wurden durch direktes Einsetzen der Zerfallskonstanten mit der Benennung in die jeweiligen Wertebereiche gewonnen. Aufgrund der Halbwertszeiten der beteiligten Elemente konnten so die wesentlichen Größen direkt in dem linearen Koordinatensystem dargestellt werden. In Abb.4.3 wird nun der Zerfall von Rn^{222} , der Muttersubstanz des Po^{218} , und das Verhalten der Tochterelemente für einen Zeitraum von 40 Tagen gezeigt. Es ist aber lediglich der Abfall des Rn^{222} und die Anreicherung des Pb^{210} zu sehen und in Abb. 3 nur noch der Bleizerfall. Die Zeitintervalle wurden lediglich durch Ändern des konstanten Summationsfaktors (für Tage jeweils + 1440 und für Jahre jeweils + 1440 · 365) erhalten, sodaß immer die gleichen Zerfallskonstanten λ verwendet werden konnten. Für die Skalenwerte der x-Achse wurde ein neuer Bereich definiert, in dem die Minutenwerte der unabhängigen Variablen in die jeweiligen Werte für Tage bzw. Jahre verwandelt wurden. Die Anzahl der angezeigten Werte konnte optional festgelegt werden. Um nun sowohl den Rn^{222} -Zerfall als auch das Pb^{210} -Verhalten zu veranschaulichen, wurde eine neue nichtlineare Skalierung der Abszisse gewählt: Anstelle der Aufaddition mit einem konstanten Summanden wurde nun durch Multiplikation mit einem konstanten Faktor der nächst größere x-Wert erzeugt. Die Skalenwerte der x-Achse wurden wieder in einem eigenen Bereich abgelegt, diesmal jedoch durch wechselnden Umrechnungsfaktor in verschiedenen Einheiten: Minuten, Stunden, Tage, Jahre. Bei den tatsächlich angezeigten Zeitwerten wurde nachträglich zum Zahlenwert noch die jeweilige Benennung, die dann auch im Bild erscheint, in den Anzeigebereich nachgetragen. Da ab der 5. Tochter sich die Ungenauigkeit der arithmetischen Operationen zu sehr bemerkbar machte und es zusätzlich noch Probleme mit der zur Verfügung stehenden Größe des Arbeitsspeichers gab, wurde für die Parameterberechnung und -Verknüpfung der Zahlenwert mit einem Taschenrechner (TI-59) bestimmt. Die Abb. 11 zeigt den zeitlichen Verlauf der Rn^{222} -, der Pb^{210} - und schließlich der stabilen Pb^{206} -Entwicklung. Die Zwischenprodukte Po^{218} , Pb^{214} und Bi^{214} sowie Bi^{210} und Po^{210} liegen in solch geringer Menge vor, daß sie nicht deutlich erkennbar sind. In der Abb. 12 wurde die y-Achse derart gestreckt, daß nun auch das zeitliche Verhalten dieser

Elemente sichtbar wird. Um nun die vollständige Zerfallsreihe vom Radon bis zum stabilen Endprodukt mit allen Zwischengliedern graphisch zu erfassen, wurde die y-Achse in logarithmischer Skalierung angelegt und die Grenzen der jeweiligen Graphen mit Leerzeichen "abgeschnitten", sodaß das Verhalten über 7 Zehnerpotenzen gesehen werden kann.

4.3.3.4 Dosisberechnung

Nach etwa 2 Monaten hat sich praktisch (>99%) das gesamte Rn^{222} in Pb^{210} umgewandelt, sodaß

$$17,6 \cdot 10^{12} \text{ Pb}^{210} \frac{\text{Atome}}{\text{mCi}} ;$$

vorliegen. Nach Gleichung

$$N = \frac{A}{\lambda} = \frac{A}{\ln 2} \cdot \text{HWZ}; \quad (5.17 \text{ bei /LIESER/})$$

ergibt sich bei bekannter HWZ von Pb^{210} (22,3 a) eine Aktivität von

$$A = \frac{\ln 2 \cdot N}{\text{HWZ}} ;$$

und damit

$$A(\text{Pb}^{210}) = \frac{\text{HWZ}(\text{Rn}^{222})}{\text{HWZ}(\text{Pb}^{210})} \cdot A(\text{Rn}^{222}) = \frac{3,82\text{d}}{22,3 \cdot 365\text{d}} A(\text{Rn}^{222});$$

also bei 0,5 μCi Pb^{210} pro mCi Rn^{222} Anfangsaktivität.

[0,5kBq/MBq \Rightarrow 17kBq Pb pro 37MBq Rn]

(Vergl. /CAMIEL & al./ : 0,1 μCi [4kBq] nach 25 Jahren; (3.1.4)

/JOHNS & SKARSGAARD/ : $2 \cdot 10^5$ herabgesetzt; (4.3.2)

und /BOGGS/ : 0,5 μCi . [18kBq]) (3.2.4)

Die Anfangsmasse des strahlenden Bleis liegt nach /LIESER/

$$m = \frac{17,6 \cdot 10^{12} \cdot 210}{6,02 \cdot 10^{23}} = 6,14 \frac{\text{ng}}{\text{mCi Rn}^{222}} ; \left[\frac{0,166\text{ng}}{\text{MBq Rn}^{222}} \right]$$

Da ein Gold Seed nach /BOGGS/ 32,7 mg wiegt, folgt eine Pb^{210} -Verunreinigung des Goldes von etwa 0,2 ppm, also ein Wert, der im chemischen Sinn die Bezeichnung "reinst" rechtfertigt.

Unter der Annahme, daß ein Ring ausschließlich aus alten Goldseeds angefertigt wurde, kann er maximal 31 seeds pro Gramm Eigengewicht enthalten, also 15,5 μCi [574kBq] Pb^{210} pro Gramm Gold. Dabei ist eine Anfangsaktivität von 1mCi [37MBq] pro seed angenommen.

Nach /HINE/ ist die an der Oberfläche eines unendlich ausgedehnten Stabes vorliegende Dosis, verursacht durch einen homogen im Material verteilten β -Strahler, gegeben durch

$$D_{\beta}^{(0)} = 0,8 \cdot 10^{-8} \cdot \bar{E}_{\beta} \cdot \tau$$

Darin ist \bar{E}_{β} : mittlere Energie der β -Teilchen [MeV]

$$\bar{E}_{\beta} \approx E_{\beta\text{max}} / 3 = 5,67 \cdot 10^{-3} \text{ MeV}$$

τ : Volumenaktivität [Zerfälle pro Gramm]

Aus der oben berechneten maximalen Aktivität eines Goldrings (0,57MBq / g) folgt damit für die Anzahl der Zerfälle pro Tag

$$\dot{\tau} = 0,5 \cdot 10^6 \cdot 86400 \text{ Zerfälle/g/Tag} \approx 5 \text{ Zerfälle/g/Tag}$$

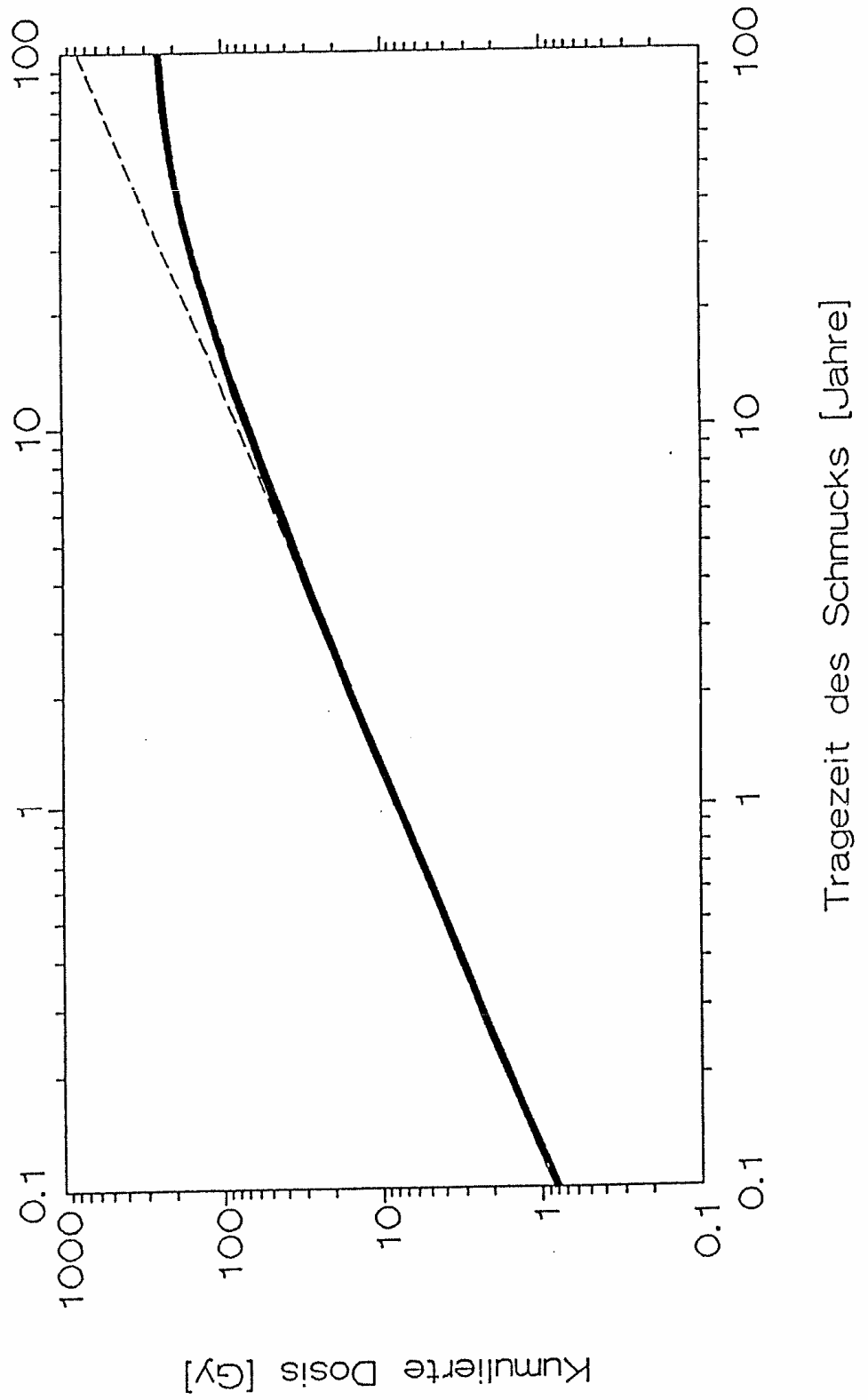
Setzen wir die Werte für $\dot{\tau}$ und \bar{E}_{β} in obige Gleichung ein, so erhalten wir für die maximale Anfangsdosis pro Tag an der Oberfläche des Rings (und damit der Hautoberfläche) $\dot{D}_{\beta}^{(0)} \approx 2,24 \text{ rad}$ pro Tag [0,0224 Sv/d]. Diese Dosis klingt mit der Halbwertszeit des Pb^{210} ab, sodaß der Wert nicht mit der Zeit multipliziert werden darf. Vielmehr ist z.B. die Dosis nach $t = n$ Jahren gegeben durch

$$D_{\beta}^{(0)}(n \text{ a}) = 0,0224 \cdot 365 (1 + e^{-\ln 2/k} + e^{-(\ln 2/k) \cdot 2} + \dots + e^{-(\ln 2/k)(n-1)}) [\text{Gy}]$$

Strahleneexposition durch Goldschmuck Kumulierte Hautdosis durch β -Teilchen

---- Multiplik.

— HWZ = 22a
(Pb-210)



Diese hier auftretende Reihe kann durch eine Summenformel ersetzt werden, sodaß die endgültige Formel für die kumulierte Dosis nach n Jahren

$$D_{\beta}^{(0)}(n) \approx 8 \cdot \frac{1 - e^{-0,03108 \cdot n}}{1 - e^{-0,03108}} \text{ [Gy]}$$

Diese Formel ist in Abb. 4.9 dargestellt. Man erkennt das durch die endliche Halbwertzeit des Pb^{210} bedingte Abflachen der Kurve oberhalb von einer Zeit von etwa 5 Jahren. Während in den ersten Jahren die Dosisleistung etwa 8 Gy/a beträgt, ist daher die Gesamtdosis nach 10 Jahren nur etwa 70 Gy.

4.3.3.5 Örtliche Dosisleistungverteilung

Im Abstand von x cm senkrecht von der Oberfläche vermindert sich die Dosis nach folgender Formel (/HINE/):

$$D_{\beta}^{(x)} = D_{\beta}^{(0)} \alpha \left\{ c^2 \left[3 - e^{1 - \frac{\nu}{c} \cdot x} - \frac{\nu}{c} x \left[2 - \ln \left(\frac{c}{n} \cdot \frac{1}{x} \right) \right] \right] + e^{1 - \nu x} \right\} \text{ für } \frac{\nu}{c} \cdot x < 1$$

$$\text{bzw. } D_{\beta}^{(x)} = D_{\beta}^{(0)} \cdot \alpha \cdot e^{-1 - \nu x} \text{ für } \frac{\nu}{c} \cdot x \geq 1;$$

wobei ν das Flächengewicht in $[\text{cm}^2/\text{g}]$ ist. α ist eine dimensionslose Größe und durch $\alpha = [3c^2 - (c^2 - 1)e]^{-1}$ definiert. c ist ebenfalls dimensionslos und festgesetzt:

$$c = \begin{cases} 2 \\ 1,5 \\ 1 \end{cases} \text{ für } \begin{cases} 0,17 < E_0 < 0,5 \text{ MeV} \\ 0,5 \leq E_0 < 1,5 \text{ MeV} \\ 1,5 \leq E_0 < 3 \text{ MeV} \end{cases}$$

$$\alpha = 0,26; \quad c = 2;$$

Daraus folgt für die relative Tiefendosis

$$\frac{D_{\beta}^{(x)}}{D_{\beta}^{(0)}} = 100 \alpha \left\{ c^2 \left[3 - e^{1 - \frac{\nu}{c} \cdot x} - \frac{\nu}{c} x \left[2 - \ln \left(\frac{c}{n} \cdot \frac{1}{x} \right) \right] \right] + e^{1 - \nu x} \right\} \text{ für } \frac{\nu}{c} \cdot x < 1.$$

Örtliche Dosisverteilung im Gewebe

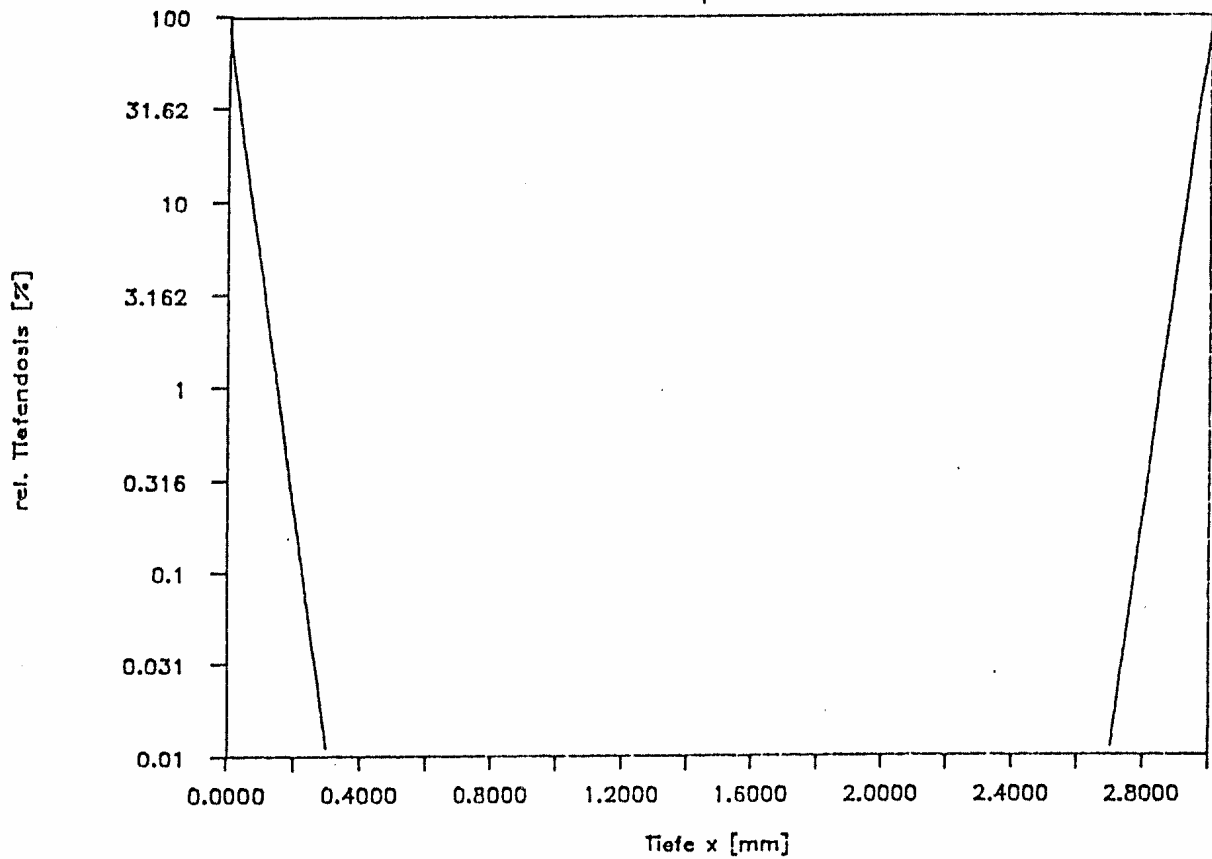


Abb. 4.10

Abb. 10 zeigt die relative Tiefendosis im Gewebe für β -Strahlen nach obiger Formel. Bereits nach etwa 0,3 mm beträgt die Dosis 0,01 ‰ des Wertes an der Oberfläche, sodaß wir mögliche Strahlenwirkungen nur in den obersten Hautschichten erwarten.

5 Biologische Wirkungen ionisierender Strahlen auf die Haut

Hautschäden sind die ältesten bekannten Wirkungen ionisierender Strahlen überhaupt. Schon im Jahre 1896, also nur ein Jahr nach der Entdeckung der Röntgenstrahlen, erschien ein kurzer Bericht mit einer "Mitteilung des Ingenieurs LEPPIN" über die Eigenschaft "der so viel besprochenen X-Strahlen, ähnlich wie Sonnenstrahlen die Haut zu verbrennen." Besonders interessant ist, daß in dem Bericht bereits von bleibenden Wirkungen im Sinne einer vorzeitigen Alterung die Rede ist; *"Nach Anwendung von Bleiwasserumschlägen ging die Röthe zurück, doch ist zwischen der linken und der rechten Hand noch jetzt nach 5 Wochen ein merklicher Unterschied vorhanden. Während die rechte Hand weiss und glatt ist, ist die linke geröthet und runzelig, so dass sie um viele Jahre älter erscheint als ihre Schwester."* Trotz dieser frühen Erkenntnis über Strahlenwirkungen auf die Haut ist ihre Quantifizierung ein bisher nicht abgeschlossenes Problem. Dies hängt mit dem außerordentlich hohen Grad der Abhängigkeit von der Fraktionierung bzw. der Dosisleistung zusammen: "Skin has an enormous capacity to repair radiation damage so that very large dose must be given, if the treatment is in many fractions, in order to produce erythema threshold changes." /UNSC/ Bei Versuchen der Bestrahlung der Haut von Ratten (Gesamtdosis 25 Gy) beobachtete VANDELAAN nur noch 1°/∞ bestimmter Wirkungen (Auftreten irreversibel geschädigter Zellen, also potentieller Tumorzellen) bei einer Verminderung der Dosisleistung von 10 Gy/h auf 1 mGy/h. Gerade bei der Haut ist daher die Angabe einer Wirkung bei bestimmter Dosis ohne gleichzeitige Angabe der Dosisleistung (bzw. der Bestrahlungszeit) unvollständig. Ein weiterer Parameter ist die Fraktionierung, bei der zwar kurzzeitig eine im Vergleich zur dauernden Bestrahlung hohe Dosisleistung vorliegt, die aber durch längere bestrahlungsfreie Intervalle unterbrochen wird. Angesichts der daraus folgenden Vielzahl von Variations- und Kombinationsmöglichkeiten ist der eingangs festgestellte Mangel an quantitativen Informationen über den Zusammenhang von Dosis und Wirkung auf die Haut nicht verwunderlich. Wir müssen uns daher auf einige Angaben zur Größenordnung beschränken.

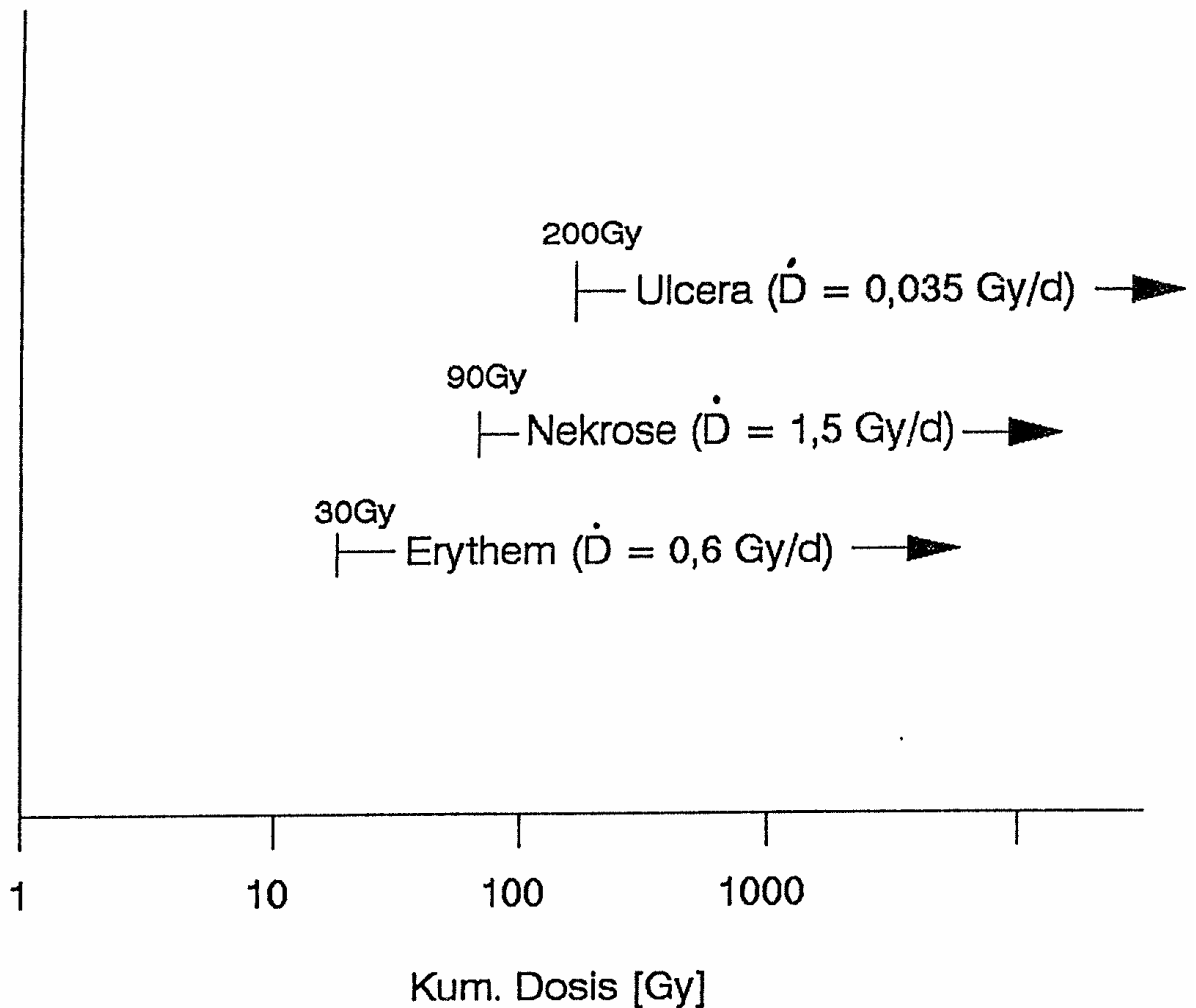


Abb. 11

Die Schwellendosis im Sinne der Erkennbarkeit mikroskopischer Veränderungen liegt bei kurzzeitiger, nicht fraktionierter Strahlung bei etwa 1 Gy; bei einer Fraktionierung wächst dieser Wert auf etwa das 10-fache. Abb. 11 stellt einige Angaben von /WACHSMANN/ zusammen. Der gleiche Autor schätzt (und diese Angabe ist für unsere Betrachtungen besonders wichtig), daß Dosisleistungen von 15 Gy/Jahr bei 10jähriger Einwirkungszeit bzw. 10 Gy/Jahr bei 20jähriger Einwirkung zu "untragbaren Veränderungen (Ulcera) der Haut führen." Diese Schätzungen beziehen sich jeweils auf eine Gesamtdosis von 150 Gy bzw. 200 Gy.

6. Diskussion

In Abschnitt 4 war die Dosis an der Hautoberfläche als Folge eines mit Pb^{210} kontaminierten Goldrings zu etwa 8 Gy/Jahr für die ersten Jahre bzw. zu 70 Gy/10a für die ersten 10 Jahre berechnet worden. Vor einer Diskussion, ob die daraus folgenden Dosiswerte im Einzelfall die in Abschnitt 3 mitgeteilten Wirkungen erklären können, muß an zwei wesentliche Annahmen bei der Berechnung der Dosisleistung erinnert werden. Wir wissen zwar, daß Goldschmuck unter Verwendung alter Radonseeds hergestellt wurde, doch ist das Mischungsverhältnis unbekannt: Wurde das Rohgold ausschließlich durch Schmelzen alter Goldseeds angefertigt, oder wurde (was wahrscheinlicher ist) der Schmelze jeweils eine unterschiedliche Menge nichtkontaminierten Goldes hinzugefügt? Mangels irgendwelcher Informationen wurde hier der Extremfall angenommen: Der Ring wurde ausschließlich unter Verwendung kontaminierter Goldseeds angefertigt.

Ein weiterer Parameter ist die Ausgangsaktivität der Radonseeds, für die hier ein Wert von 1 mCi (37 MBq) Rn^{222} angenommen wurde. Tatsächlich schwankte jedoch nach GRAHAM die übliche Anfangsaktivität zwischen 0,5 und 5 mCi. Unsere Annahme (1 mCi) erfolgte einmal aus der Erfahrung, daß in der täglichen Routine bei Abwesenheit sonstiger Entscheidungskriterien eine gewisse Tendenz zu "geraden Werten" (hier also 1 mCi) besteht. Wichtiger war allerdings die Überlegung, daß es im Sinne einer möglichst wirklichkeitsnahen Abschätzung nicht sinnvoll ist, bei allen Parametern jeweils den Maximalwert anzunehmen. Eine Änderung der Eingangsaktivität setzt sich linear bis auf die Dosis der Ringe fort.

Ein Vergleich der errechneten Dosiswerte (für einen Zeitraum von einem bis drei Jahre etwa 10 bis 30 Gy) mit Dosiswirkungen aus der Literatur läßt einen Strahlenschaden der Haut als Folge kontaminierter Goldschmucks möglich erscheinen.

In einem Falle (vergl. Abschnitt 3.2.5 und 3.2.7) traten Reaktionen bereits nach einer Tragezeit von nur 6 Wochen auf. Hier war allerdings die Anzahl der Radonseeds bekannt: mit über 100 Stück betrug der Wert mindestens das 3fache unserer Annahme in Abschnitt 4, so daß die Dosis nach unserer Rechnung zwischen 3 und 5 Gy gelegen haben sollte. Mit der Zusatzannahme, daß hier seeds mit einer höheren Anfangsaktivität als 1 mCi Rn²²² verwendet wurden, ist auch hier eine Strahlendermatitis wahrscheinlich.

7 Zusammenfassung

Ab etwa 1900 wurde Radon (Rn^{222}) als geschlossene, implantierbare Quelle zur Krebstherapie verwendet, zuerst in Glaskapillaren, Stahl- und Platinröhrchen, dann jedoch auch in 4 mm langen, hohlen Nadeln, die aus 24 karätigem (32,7 mg) Gold hergestellt waren. Radon hat eine Halbwertszeit von knapp 4 Tagen, sodaß seinerzeit angenommen wurde, daß die seeds nach einiger Zeit (Monate) aktivitätsfrei sein würden, und daher in situ belassen werden könnten. Berichte über Spätschäden sowie Klagen über unverträglichen Goldschmuck veranlaßten genauere Untersuchungen, die ein langlebiges, schwach strahlendes Zwischenprodukt (Blei^{210}) als Ursache erkannten. Bisher wurden 200 goldene Ringe und Nadeln mit radioaktivem Material entdeckt, die hauptsächlich zwischen 1935 und 1945 gekauft worden waren, einige wurden jedoch erst kürzlich (1981) noch erworben. Bis auf zwei Ausnahmen ließ sich die Herkunft auf den Staat New York oder Buffalo zurückführen. Bei einer Nachuntersuchung von 107 Schmuckträgern in New York wurde bei 28 % Dermatitis und bei 7 % Krebs am Ringfinger festgestellt. Insgesamt wurden bisher 14 Fälle von solchem Krebs überhaupt festgestellt. Die Schwere der Krankheit zeigte eine Abhängigkeit von der durchschnittlichen Tragedauer der Ringe. Die Aktivität des Goldes konnte auf den Gehalt an alten Radonseeds zurückgeführt werden.

In der vorliegenden Arbeit ist diese in Deutschland wenig bekannte Entwicklung zunächst als Literaturübersicht zusammengestellt. Weiterhin wurden die verschiedenen Berechnungen überprüft und mit eigenen Ableitungen ergänzt. Der Verfasser kommt zu dem Ergebnis, daß unter einigen plausiblen Annahmen kontaminierter Goldschmuck der oben beschriebenen Art eine Hautdosis von etwa 8 Gy/Jahr bewirkt. Ein Vergleich mit anderen Erkenntnissen über die Wirkung ionisierender Strahlen bei geringen Dosisleistungen lassen die Annahme zu, daß die berichteten Schäden auf ionisierende Strahlung zurückzuführen ist.

8 Literaturverzeichnis *)

1. ARIEL, I. M.; HEAD, J. R.; LANGSTON, H. T.; AVERY, E. E.:
The use of interstitial radon seeds and needles
in inoperative lung cancer.
Cancer, N.Y. 4:581-586 (1949,2).
2. ARNDT, J.:
Indikationen und Grenzen der Strahlentherapie
bösaertiger Neubildungen.
p.301.482 (Fischer, Stuttgart 1973).
3. ATTIX, F. H.; TOCHILIN, E.:
Radiation Dosimetry.
vol.3, 2nd ed. (New York/London 1969).
4. AUERBACH, R.; PEARLSTEIN, H. H.:
Radiation dermatitis secondary to radon needles.
J. Am. med. Ass. 218:888 (1971).
5. AUERBACH, R.; PEARLSTEIN, H. H.:
Ulcerative radiation dermatitis secondary to radon seeds.
N. Y. St. J. Med. 73:2183-2184 (1973).
6. AURAND, K.; SCHRAUB, A.:
Biophysikalischer Beitrag zur Radontherapie.
Strahlentherapie Sonderband 33:60-73 (1955).
7. BAPTISTE, M. S.; ROTHENBERG, R.; NASCA, P. C.; JANERICH, D. T.;
STUTZMAN, C. D.; RIMAWI, K.; O'BRIEN, W.; MATUSZEK, J.:
Health effects associated with exposure to
radioactively contaminated gold rings.
J. Am. Acad. Derm., St. Louis 10:1019-1023 (1984).

*)zit. nach: **Das Manuskript** 5. Aufl. (Karger, Basel 1980)

8. BARONE, R. M.:
Treatment of carcinoma of the pancreas with radon seed
implantation and intra-arterial infusion of 5-FUDR.
Surg. Clin. N. Am. 55:117-126 (1975).
9. BATEMAN, H.:
The solution of a system of differential equations
occurring in the theory of radioactive transformations.
Proc. Cambridge Philos. Soc. 15:423-427 (1910).
10. BAYLISS, R. J.:
Radon leakage from sealed radium sources in medical use.
Med. J. Aust. 1:496-498 (1967).
11. BOGGS, R. F.; SCHMIDT, G. D. WILLIAMS, K. D.:
Radiological health aspects of spent radon seeds.
Radiol. Health Data Rep. 10:185-190 (1969).
12. BONIUK, M.; GIRARD, L. J.:
Malignant melanoma of the choroid treated with photocoagulation
transscleral diathermy and implanted radon seeds.
Am. J. Ophthal. 59:211-216 (1965).
13. BOULANGER, R.:
Determination de petites quantités de Rn par une méthode
de comptage.
J. Belg. de Radiologie, Bruxelles 35:569-577 (1952).
14. BUSH, F.:
Energy absorption in radium therapy.
Br. J. Radiol. 19:14-21 (1946).
15. BUSH, F.:
The integral dose received from a uniformly
distributed radioactive isotope.
Br. J. Radiol. 22:96-105 (1949).

16. CAMIEL, M. R.; THOMPSON, D.:
Delayed hazards of radon irradiation.
J. Am. med. Ass. 219:384 (1972).
17. CLIFFTON, E. E.; HENSCHKE, U. K.; SELBY, H. H.:
Treatment of cancer of the lung by interstitial implantation.
Cancer, Philad. 11:9-17 (1958).
18. COHEN, L.:
Clinical radiation dosage.
III. A biological factor in radon and isotope dosage.
Br. J. Radiol. 23:25-27 (1950).
19. DIK, W.
A loading device for radon seed elastoplast moulds.
Br. J. Radiol. 28:515 (1955).
20. DOWNING, J. G.; FOLAN, D.:
Late ulceration twenty years after implantation of radon seeds.
New Engl. J. Med. 249:1031-1032 (1953).
21. DUANE, W.:
Methods of preparing and using radioactive substances in the
treatment of malignant disease, and of estimating suitable dosages.
Boston Med. Surg. J. 177:787-799 (1917).
22. EMMET, J. L.; WINTERRINGER, J. R.:
Experience with implantation of radon seeds for bladder tumors:
Comparison of results with other forms of treatment.
J. Urol., Baltimore 73:502-515 (1955).
23. ERDTMANN, G.; SOYKA, W.:
The gamma rays of the radionuklides.
(Weinheim/New York 1979).
24. ESCHENROEDER, H. C.; MOCH, R.:
Treatment of mammary adenocarcinoma with radon implantation.
Vet. Med. 60:489-491 (1965).

25. EVANS, R. D.:
The atomic nucleus.
(New York/Toronto/London 1955).
26. FAILLA, G.:
The development of filtered radon implants.
Am. J. Roentg. Rad. Ther. nucl. Med. 16:507-525 (1926).
27. FARR, R. F.:
Dosage control through radiographs of radon seed implants.
Br. J. Radiol. 26:429-434 (1953).
28. FINGERHUT, A. G.; COLLINS, V. P.:
Local treatment of retinal tumors with radon.
Radiology 81:1003-1007 (1963).
29. FORREST, A. P. M.; BROWN, P. D. A.; MORRIS, S.;
ILLINGWORTH, C. F. W.:
Pituitary radon implant for advanced cancer.
Lancet 399-401 (1956).
30. FROST, D.:
Über die Dosierung von radioaktiven Seeds.
Strahlentherapie 113:136-139 (1960).
31. GERWIG, T.; TONAWANDA; WINER, M. N.:
Radioactive jewelry as cause of cutaneous tumor.
J. Am. med. Ass. 205:123-124 (1968).
32. GILLESPIE, P. J.; ALEXANDER, J. L.:
Discovery of an old radon generator.
Br. J. Radiol. 47:161-162 (1974).
33. GOLDSTEIN, N.:
Radon seed implants.
Residual radioactivity after 33 years.
Arch. Derm. 111:757-759 (1975).

34. GRAHAM, J.; BURSTEIN, P.:
Incidence of second cancers after radon seed
therapy for cervix cancer.
Acta radiol. Ther., Stockholm 7:453-461 (1968).

35. GRAHAM, J. B., GRAHAM, R. M., SOTTO, L. S. J. BAILY, N. A.:
Spent radon seeds: I. Late effects.
Radiology 74:399-402 (1960).

36. GRAY, L. H.:
The experimental determination by ionization
methods of the rate of emission of beta- and
gamma-ray energy by radioactive substances.
Br. J. Radiol. 22:677-697 (1949).

37. HACHENBURG, D.:
Keine radioaktiven Ringe?
Dt. Ärztebl. 8:506 (1969) Sonderdruck.

38. HACHENBURG, D.:
Radioaktive Goldringe gibt's wirklich.
Med. Trib. 15:42 (1985).

39. HALL, S. M.:
Instrumental and technical notes.
Differential loading for linear gamma-ray sources -
the London Hospital technique.
Br. J. Radiol. 27:358-362 (1954).

40. HAM, H. J.; LOEWENTHAL, L. S.:
The permanent implantation of gold radon seeds:
The technique and indications for the use of the method.
Med. J. Aust. [vol.ii] 29:620-622 (1941).

41. HELM, F.:
Squamous cell carcinoma due to radioactive ring.
Arch. Derm. 110:465-466 (1974).

42. HENRIQUES, F. W.:
Effect of beta rays on the skin as a function
of the energy, intensity and duration of radiation.
I. Physical considerations. Preparation and
calibration of beta-emitting plaques.
Lab. Invest. 1:153-166 (1952).
43. HENSCHKE, U. K.:
Infissione interstiziale permanente con semi
radioattivi a lunga a bassa energia.
Minerva med., Torino 58:4535-4536 (1967).
44. HINE, G. J.; BROWNELL, G. L.:
Radiation dosimetry.
(Academic Press, New York 1956).
45. HOLUBAR, K.; HELM, F.; KLEIN, E.:
Hautkrebs durch radioaktiven Goldring.
Hautarzt 24:489-491 (1973).
46. HÜBNER, W.; JÄGER, R. G.:
Dosimetrie und Strahlenschutz.
(Thieme, Stuttgart 1974).
47. ILLINGWORTH, C. F. W.; FORREST, A. P. M.; BROWN, P. D. A.:
A simple method of implanting radon seeds in the pituitary
gland in the treatment of advanced breast cancer.
Surg. Forum ,Philadelphia 6:406-408 ((1955) 1956).
48. JOHNS, H. E.; SKARSGARD, L. D.:
Spent radon seeds: II. Radiation from spent radon seeds.
Radiology 74:403-406 (1960).
49. JONES, D.; BJARNGARD, B.; SIMON, N.; HARLEY, J.:
The application of phosphor-teflon thermoluminescent dosimeters
to the measurement of the dose-rate from radioactive jewelry.
Br. J. Radiol. 41:944-946 (1968).

50. JOYCE, A.:
Technique of treatment of intraocular Tumors with radon seeds.
Am. J. Ophthalmol. 46:649-653 (1958).
51. KAPLAN, I. I.:
The use of radon seeds in the treatment of neoplasms.
Urol. Cut. Rev. 48:122-124 (1944).
52. KASTNER, J.; GREENBERG, L.:
Measurement of beta-ray applicators.
Radiology 58:731-739 (1952).
53. KINSMAN, S.:
Radiological health handbook.
(U. S. Department of Health, Education and Welfare,
Cincinnati, Ohio 1957).
54. KIRK, J.; GRAY, W. M.; WATSON, E. R.:
Cumulative radiation effect part III:
Continuous radiation therapy - short-lived sources.
Clin. Radiol. 24:1-11 (1973).
55. KNUTSON, E. O.; GEORGE, A. C. FREY, J. J.; KOH, B. R.:
Radon daughter plateout - II prediction model.
Health Physics 45:445-452 (1983).
56. KROHMER, J. S.:
Physical measurements of various beta-ray applicators.
Am. J. Roentg. Rad. Ther. nucl. Med. 66:791-799 (1951).
57. LASKOWSKI, W.:
Biologische Strahlenschäden und ihre Reparatur.
(Springer Berlin/New York 1981).
58. LECOIN, M.; ZLOTOWSKI, I.:
Microcalorimetric measurement of the mean energy
of disintegration of radium E.
Nature 144:440-441 (1939).

59. LÉGARÉ, J.-M.:
L'emploi de la géométrie descriptive pour localiser les sources de radium, de radon et de radioisotopes artificiels des fins de dosimétrie.
Acta radiol. Ther., Stockholm 1:288-302 (1963).
60. LEONE, R. A.:
Radiodermatitis caused by a radioactive gold ring.
J. Am. med. Ass. 206:2113-2114 (1968).
61. LEPPIN, O.:
Kleine Mitteilungen.
Dt. med. Wschr. 22:454 (1896).
62. LIEGNER, L. M.:
Radon and radioactive seed volume implants for extensive recurrent vaginal-pelvic cancer.
Radiology 82:786-793 (1964).
63. LIESER, K. H.:
Einführung in die Kernchemie.
(Verlag Chemie, Weinheim 1969).
64. LOEVINGER, R.:
The dosimetry of Beta Radiations.
Radiology 62:74-82 (1954).
65. LOEVINGER, R.:
The dosimetry of beta sources in tissue.
The point-source function.
Radiology 66:55-62 (1956).
66. LOEVINGER, R.; JAPHA, E. M.; BROWNELL, G. L.:
Discrete radioisotope sources.in:
HINE, G. J.; BROWNELL, G. L.:
Radiation dosimetry.p.693-799 (Academic Press, New York 1956).

67. LURIA, W. L.; BERMAN, H.; SATCHIDANAND, S.:
Chronic radiation dermatitis from radioactive gold jewelry.
N. Y. St. J. Med.:741-743 (1983).
68. MANALAN, M. M.; LITTLE, W. J.:
Loss of a radon seed in a patient.
Radiology, Syracuse 59:525-527 (1952).
69. MARINELLI, L. D.; QUIMBY, E. H.; HINE, G. J.:
Dosage determination with radioactive isotopes.
II. Practical considerations in therapy and protection.
Am. J. Roentg. Rad. Ther. nucl. Med. 59:260-281 (1948).
70. MARSHALL, J. H.:
How to figure shapes of beta - ray spectra.
Nucleonics 13:34-38 (1955).
71. MAYNEORD, W. V.:
The distribution of radiation around simple radioactive sources.
Br. J. Radiol. 5:677-716 (1932).
72. MAYNEORD, W. V.:
Energy absorption.
Br. J. Radiol. 13:235-247 (1940).
73. MAYNEORD, W. V.:
Energy absorption IV.
The mathematical theory of integral dose in radium therapy.
Br. J. Radiol. 18:12-19 (1945).
74. MEAD, K. W.; STEVENS, K. A.:
Methods of increasing accuracy in radon and radium implants.
Med. J. Aust. [vol.ii(7)] 42:232-235 (1955).
75. MILES, W. A.:
Use of radon seeds as an adjunct to external radiotherapy.
J. nat. med. Ass. 54:108-109 (1962).

76. MINTY, C. C. J.; ROBERTSON, D. F.:
A radon applicator for treating carcinoma of the vocal cord.
J. Fac. Radiol. 7:136-138 (1955).
77. MORITZ, A. R.; HENRIQUES, F. W.:
Effect of beta rays on the skin as a function
of the energy, intensity and duration of radiation.
II. Animal experiments.
Lab. Invest. 1:167-185 (1952).
78. MURPHY, W. T.:
Radiation therapy.
p.561-562 (Sounders, Philadelphia/London, 1967).
79. NEUMANN, Z.:
Treatment of arterial hemangiomas of the face.
Acta med. orient., Jerusalem 13:175-176 (1954).
80. ORTON, C. G.:
Time-dose factors (TDFs) in brachytherapy.
Br. J. Radiol. 47:603-607 (1974).
81. PATERSON, R.:
The treatment of malignant disease by radiotherapy.
p.372-374 (Arnold, London,).
82. PETROW, N.; KUSMINA, E.:
Experimentelle und klinische Versuche mit der Einführung
vom Radiumemanation in normale Gewebe und in Geschwülste.
Dt. med. Wschr. 15:622-624 (1926).
83. PHILIPS, S.:
Radon seeds in the treatment of glioma retinae.
Trans. ophthal. Soc. U.K. 64:107-114 ((1944) 1945).

84. PORSTENDOERFER, J.:
Die Diffusionskoeffizienten von Radon (^{222}Rn , ^{220}Rn)
in einigen festen Substanzen.
Biophysik 5:248-254 (1968).
85. RINKER, R. J.:
Implanter for radon seeds for use with the
McCarthy foroblique pan-endoscope.
J. Urol., Balt. 62:91 (1949).
86. ROBERTS, J. E.:
Dosage considerations with radium surface applicators.
Br. J. Radiol. 11:755-761 (1938).
87. ROSSI, H. H.; ELLIS, R. H.:
Distributed beta sources in uniformly absorbing media - I
Nucleonics 7[1]:18-25 (1950).
88. ROSSI, H. H.; ELLIS, R. H.:
Distributed beta sources in uniformly absorbing media - II
Nucleonics 7[2]:19-25 (1950).
89. ROSSI, H. H.; ELLIS, R. H.:
Calculations for distributed sources of beta radiation
Am. J. Roentg. Rad. Ther. nucl. Med. 67:680-688 (1952).
90. SAUNDERS, T. S.; MONTGOMERY, H.:
Chronic roentgen and radium dermatitis.
An analysis of 259 cases.
J. Am. med. Ass. 110:23-28 (1938).
91. SCHPOLSKI, E. W.:
Atomphysik.
II, Bd.9 (VEB Verlag der Wissenschaften Berlin 1969).

92. SHALEK, R. J.; STOVALL, M. A.; SAMPIERE, V. A.:
The radiation distribution and dose specification
in volume implants of radioactive seeds.
Amer. J. Roentg. 77:863-868 (1957).
93. SHOR, R.:
Radioactive gold stirs frantic searches in Buffalo.
p.104-106 (Jeweler's Circular-Keystone 1981).
94. SIEGBAHN, K.:
Alpha-, Beta- and Gamma-ray spectroscopy
[vol.i,ii] (North-Holland, Amsterdam 1965).
95. SIMON, N.; HARLEY, J.:
Skin reactions from gold jewelry contaminated with radon depos
J. Am. med. Ass. 200:254-255 (1967).
96. SINCLAIR, W. K.; TROTT, N. G.:
The construction and measurement of beta-ray
applicators for use in ophthalmology.
Br. J. Radiol. 29:15-23 (1956).
97. SMITH, M. DE F.:
A graphic method of reconstructing radium needle
implants for calculation purposes.
Am. J. Roentg. 79:42-48 (1958).
98. SOMMERMEYER, K.:
Die Dosimetrie der Betastrahlung radioaktiver
Isotope in luftäquivalenten Substanzen.
Strahlentherapie 95:302-311 (1954).
99. STALLARD, H. B.:
Retinoblastoma treated by radon seeds and radio-active disks.
Ann. R. Coll. Surg. 16:349-366 (1955).

100. STALLARD, H. B.:
Pathological study of retinoblastoma treated
by radon seeds and radium disks.
Bull. N. Y. Acad. Med. 30:132-151 (1954).
101. STEARNS, F. W.:
The curious case of the radioactive ring.
J. Am. Acad. Derm. 5:696-697 (1981).
102. STEVENSON, W. C.:
Preliminary clinical report on a new and economical method
of radium therapy by means of emanation needles.
Br. med. J. 2:9-10 (1914).
103. STUTZMAN, C. D.; CALDWELL, G. G. WIESNER, P. J.:
NARM advisory
Office of Health Physics National Center for
Devices and Radiological Health Nov.18. (1983).
104. STUTZMAN, C. D.; SCHMIDT, G. D.:
Squamous cell carcinoma of the skin
associated with radioactive gold rings.
J. Am Acad. Derm., St. Louis 10:1075-1077 (1984).
105. TAMLER, E.; WINTER, F. C. TOCH, P.:
Radiation effect on intraocular tissues in radon
seed treatment of retinoblastoma.
AMA Arch. Ophth. 58:647-654 (1957).
106. TOMANEK:
Über den gegenwärtigen Stand der Radiumtherapie im Ausland.
Mnch. med. Wschr. 21:802 (1922).
107. TROWBRIDGE, W. V.; ELDRED, E.:
Production of lesions in guinea pig brain by radon seeds.
Proc. Soc. exp. Biol. Med. 103:568-570 (1960).

108. VANDERLAAN, M.; BURNS, F. J.; ALBERT, R. E.:
A model describing the effects of dose and dose rate on
tumor induction by radiation in rat skin.
in:
Biological and Environmental Effects of Low-Level Radiation Vol I
IAEA Wien 1976.
109. VIGUE, R. F.:
Use of radon implants in the treatment of bovine ocular neoplasms.
J. Am. vet. med. Ass. 126:23-25 (1955).
110. WACHSMANN, F.:
Betrachtungen über das Strahlenrisiko.
Der Radiologe 9:345-353 (1970).
111. WEAST, ROBERT C.:
CRC Handbook of Chemistry and Physics.
Boca Raton, Florida 1987.
112. WOLF, P. M.; RICHL, N.:
Über einen neuen sehr einfachen Apparat zur Erzeugung von
Radiumemanation (Radon).
Mnch. med. Wschr. 27:1152 (1931).
113. WYARD, S. J.:
Radioactive-source corrections for bremsstrahlung and scatter.
Nucleonics 13:44-45 (1955).
114. Editorial:
Rings and Cancer.
TIME:66 (1968).
115. Editorial:
Aus der Fragestunde des Deutschen Bundestages.
Keine radioaktiven Ringe.
Dt. Ärztebl. 1:37 (1969).

116. Editorial:
Strahlenschaden durch Ehering?
Med. Trib. 4:3 (1985).

117. Medical News:
Radon 'seeds' kill a growing tumor.
J. Am. med. Ass. 230:519-522 (1974).

118. Editorial:
The first radiotherapy technique.
Memorial Sloane-Kettering Cancer Center New York
Center News:7.14 (27.May: April/May 1981).

119. Editorial:
State health officials search for contaminated
jewelry made with 'cancer gold'.
Memorial Sloane-Kettering Cancer Center New York
Center News:6- 7.14 (April/May 1981).

120. Department of Health and Human Services:
Skin lesions and radioactivity in jewelry.
FDA Drug Bulletin 11:3 (1981).

121. Editorial:
Ring finger sore? Check for 'hot' gold.
Medical World News:43-44 (Jan.5, 1981).

122. Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects.
UNSC 587-582, 618-619 1982.

Lebenslauf

Mein Lebenslauf wird aus Datenschutzgründen in der elektronischen Version meiner Arbeit nicht mit veröffentlicht.

Erklärung

Ich, Michael Giehl, erkläre, dass ich die vorgelegte Dissertationsschrift mit dem Thema „Pb²¹⁰-Kontamination von Goldschmuck – Entstehung – Dosis – Effekte“ selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt, ohne die (unzulässige) Hilfe Dritter verfasst und auch in Teilen keine Kopien anderer Arbeiten dargestellt habe.