

MÖGLICHE INKORPORATION NATÜRLICHER RADIONUKLIDE AN (TE)NORM-ARBEITSPLÄTZEN

DIANA WALTHER

- **Einleitung**
- **Forschungsprojekt**
- **Analysenmethoden**
- **Probandenstudie**
- **Analysenergebnisse**

EINLEITUNG

Organisation



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Verbundprojekt

- Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen

Finanziert durch:

- Bundesministerium für Bildung und Forschung

Organisation

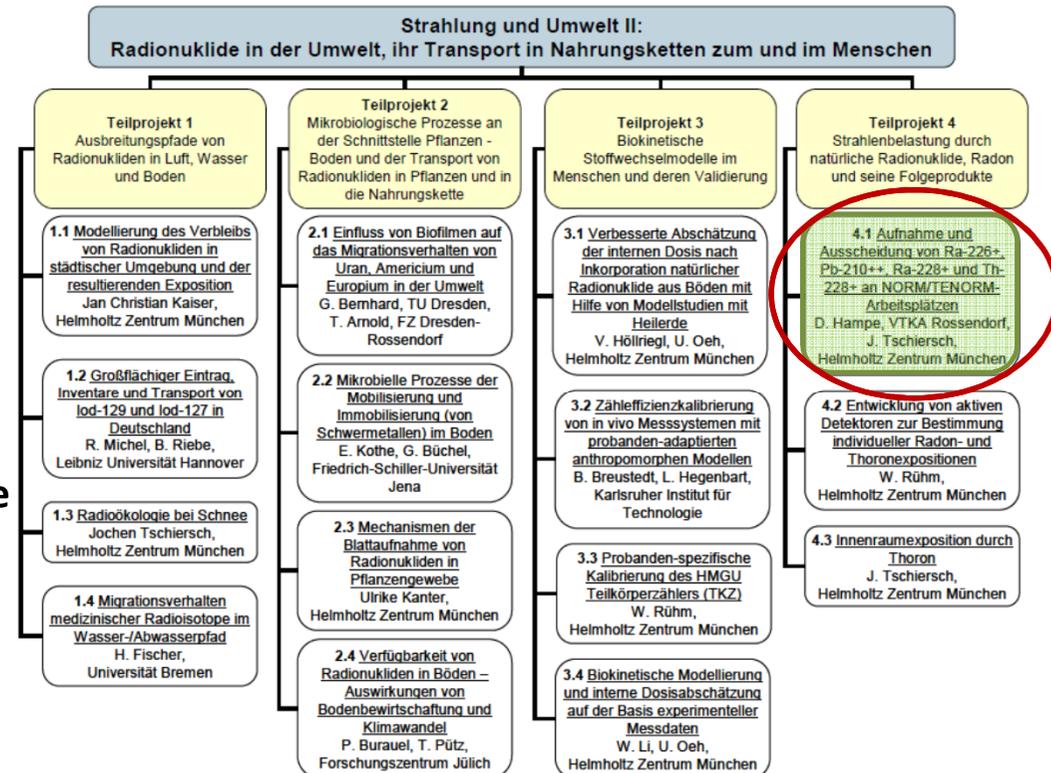
- 15 Teilprojekte
- 9 Forschungseinrichtungen
- Koordinator: HMGU, München

Leitthemen

- Ausbreitungspfade in der Umwelt
- mikrobiologische Prozesse
- biokinetisches Modeling
- Exposition durch natürliche Radionuklide

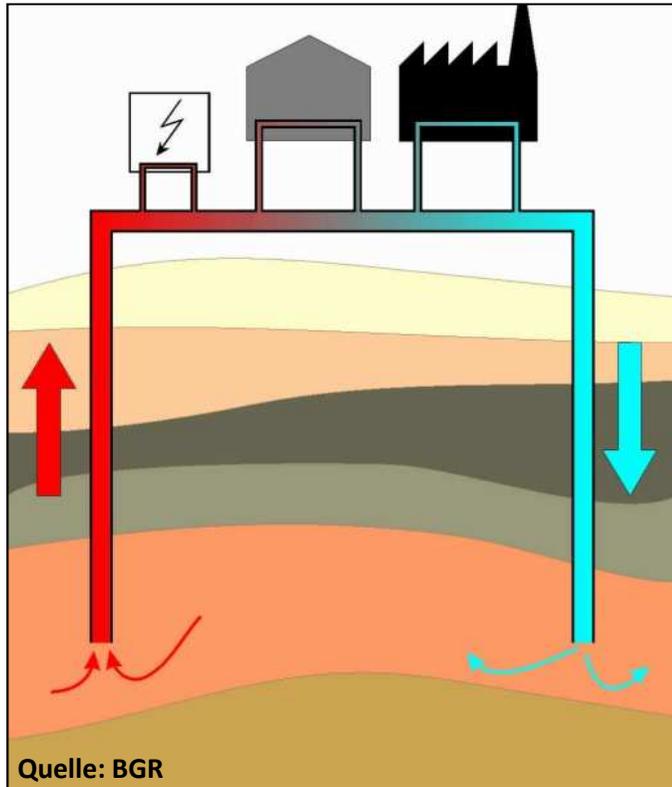
Teilprojekt AP 4.1

- Dauer: ca. 4 Jahre
- Sep 2010 – Dez 2014
- Förderkennzeichen: 02NUK015G



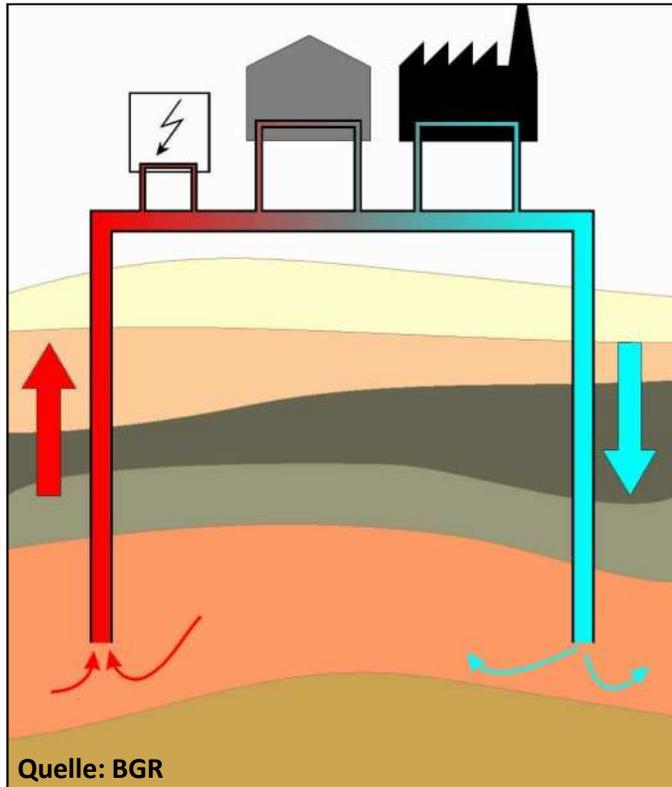
EINLEITUNG

Tiefe Geothermie und natürliche Radioaktivität



EINLEITUNG

Tiefe Geothermie und natürliche Radioaktivität



Fluid	Ausfällungen (Scales)
^{40}K	nicht abgelagert
$^{223}\text{Ra}, ^{224}\text{Ra}$	zerfallen
^{226}Ra	^{226}Ra
^{228}Ra	^{228}Ra → ^{228}Th
^{210}Pb	^{210}Pb → ^{210}Po

^{40}K	1 – 130 Bq l ⁻¹
$^{226,8}\text{Ra}$	1 – 30 Bq l ⁻¹
^{210}Pb	0,1- 0,3 Bq l ⁻¹

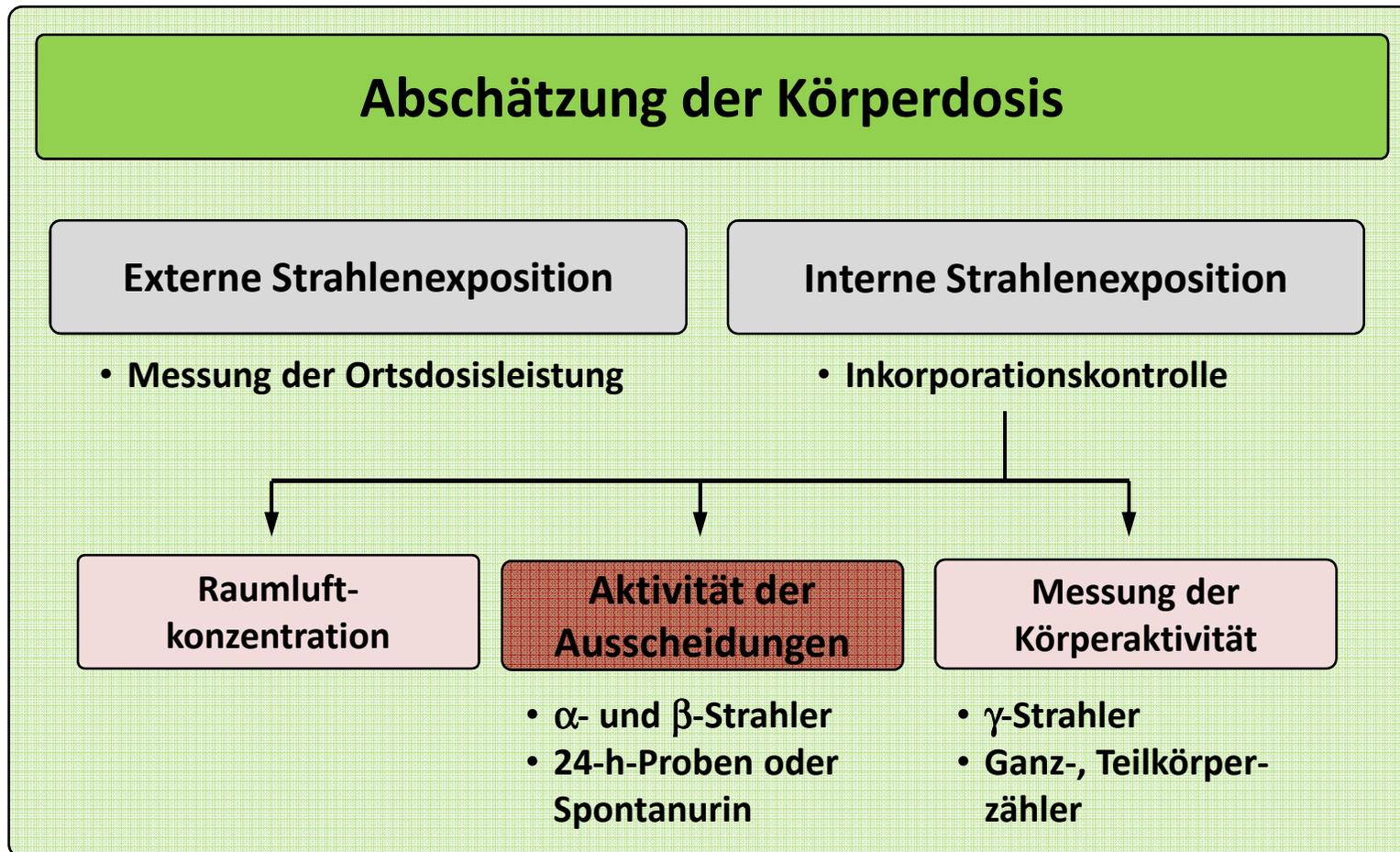
spezifische Aktivität	100-1000 Bq g ⁻¹
-----------------------	-----------------------------

Mögliche berufliche Strahlenexposition durch TENORM

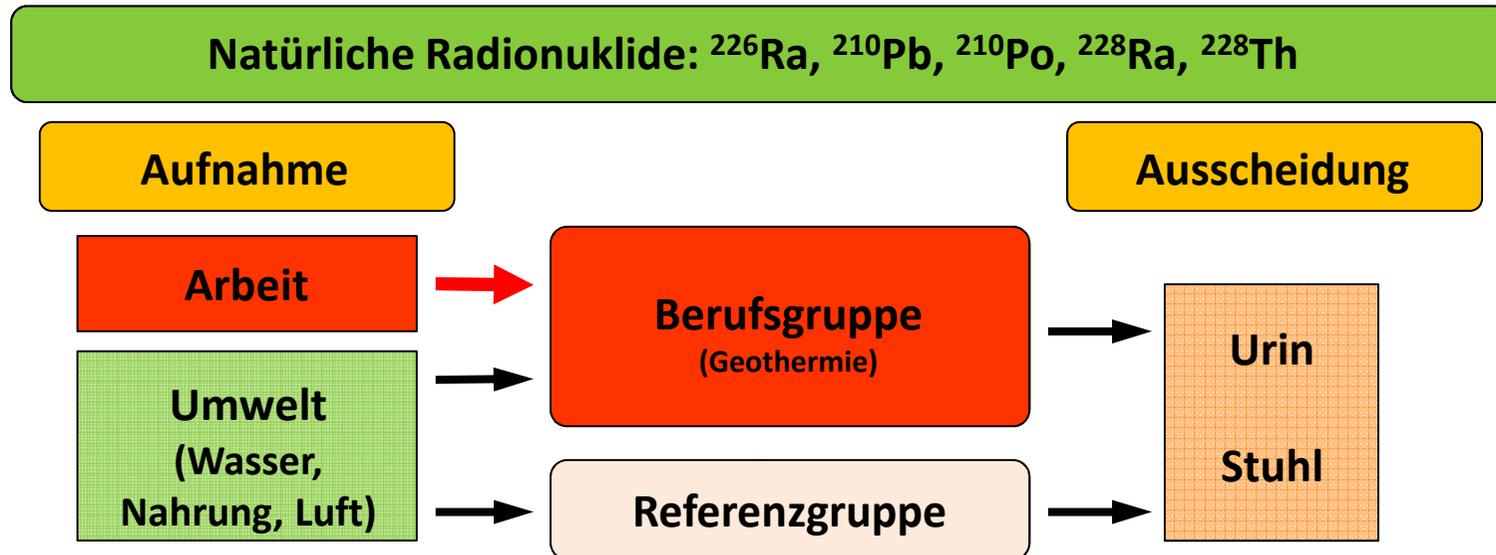
- extern: Aufenthalt in der Nähe kontaminierter Anlagenteile
- intern: Öffnung kontaminierter Anlagenteilen

EINLEITUNG

Überwachung der Strahlenexposition



AP 4.1 „Aufnahme und Ausscheidung von Pb-210+, Ra-226+, Ra-228+ und Th-228+ an (TE)NORM-Arbeitsplätzen“



Differenzierung zwischen beruflich und natürlich bedingter Exposition ?

- Methodenentwicklung/-optimierung:
 - Nahrung und Wasser (ISS)
 - Ausscheidungen (VKTA)
- Probandenstudie
 - Erprobung der Methoden
- Analyse der Proben und Auswertung:
 - Lebensmitteln/Wasser (ISS)
 - Ausscheidungen (VKTA)

METHODENENTWICKLUNG

Ausgangspunkt

Verfügbare Methoden

^{210}Pb , ^{210}Po in Urin

^{228}Th in Urin und Stuhl

^{226}Ra in Urin

Benötigte Methoden

^{210}Pb , ^{210}Po in Stuhl

^{226}Ra in Stuhl

^{228}Ra in Urin/Stuhl

Gegebenheiten

Erkennungsgrenzen

- ^{210}Pb : 5-10 mBq/l
- ^{210}Po : 0,25 – 1,0 mBq/l
- ^{228}Th : 0,25 – 1,0 mBq/x
- ^{226}Ra : 2 mBq/l

24-h-Urin: ca. 0,5 – 2,5 l

24-h-Stuhl: ca. 1 – 5 g Asche

24-h-Urin: 0,5-60 mBq d⁻¹

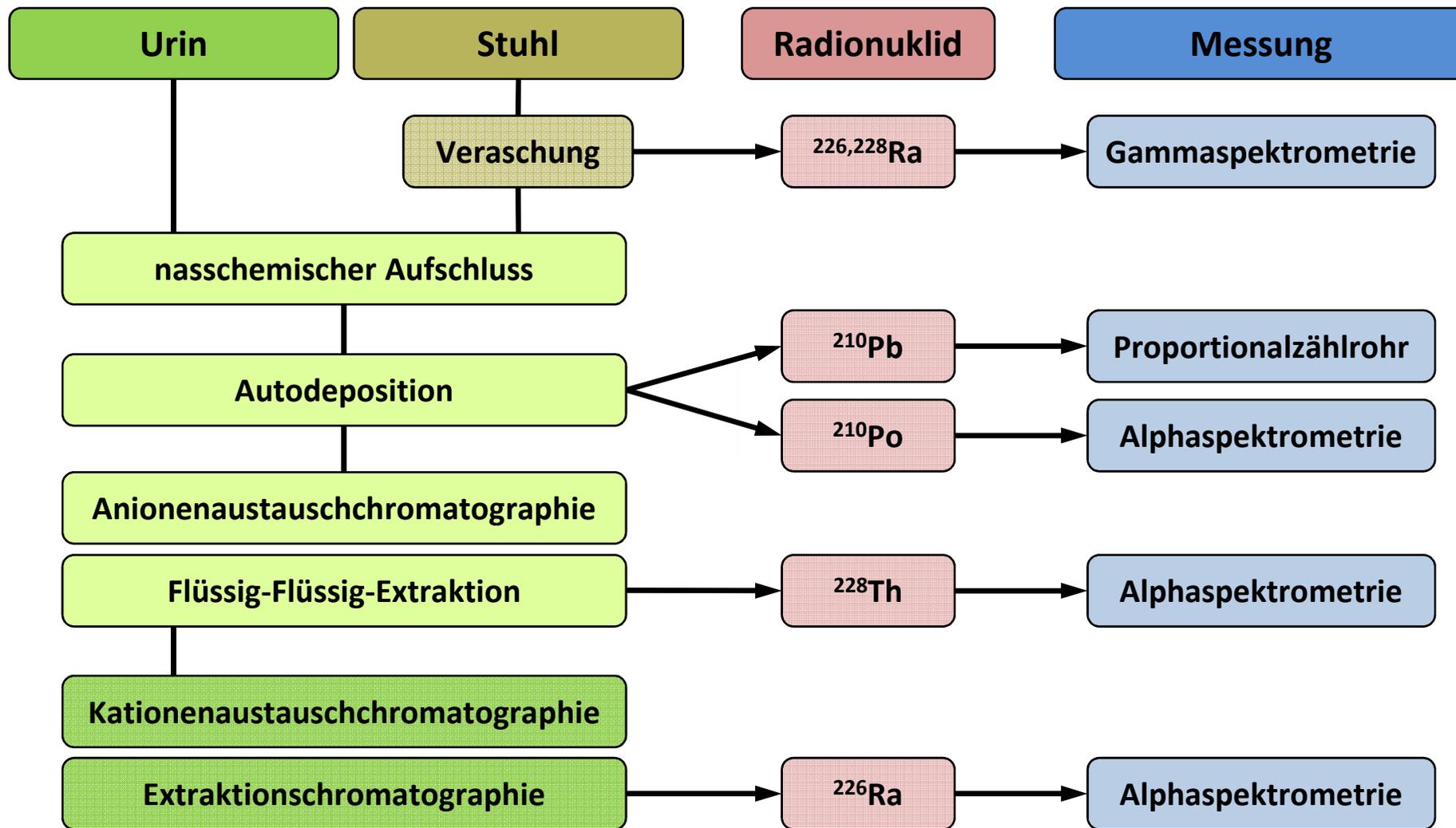
24-h-Stuhl: 15-500 mBq d⁻¹

24-h-Ausscheidungen:
Erkennungsgrenzen 0,5 mBq d⁻¹

Sequentielle Methode für Urin und Stuhl
→ Analyse eines möglichst großen Probenaliquotes

METHODENENTWICKLUNG

Bestimmung von ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl



METHODENENTWICKLUNG

Bestimmung von ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl



nasschemischer Aufschluss



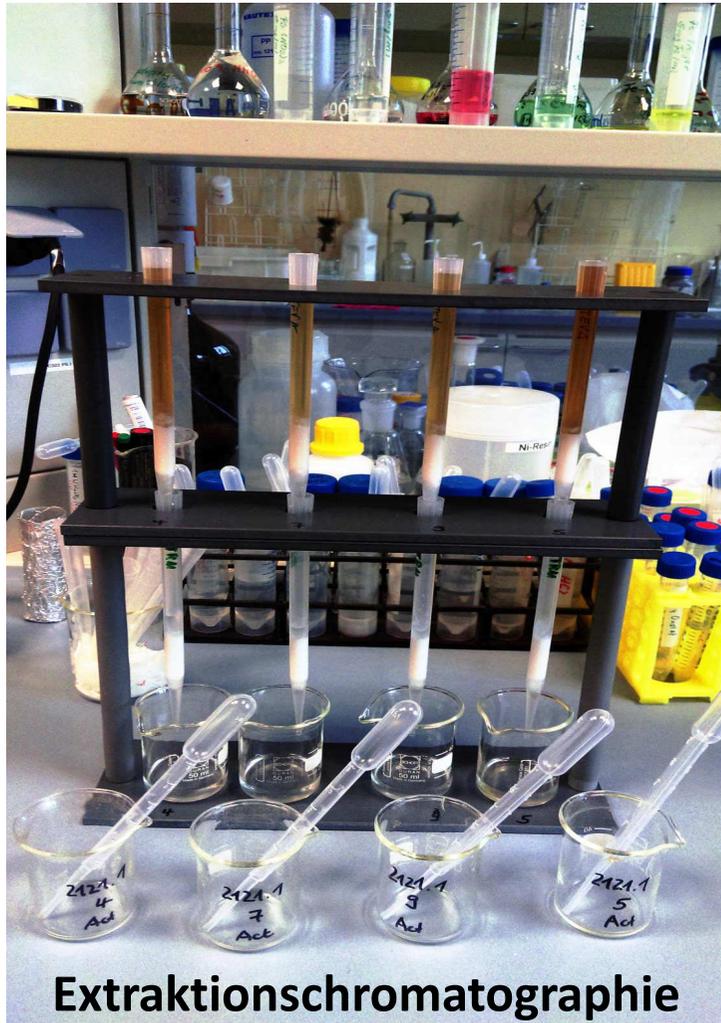
Anreicherung durch Fällung



Autodepositionszone

METHODENENTWICKLUNG

Bestimmung von ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

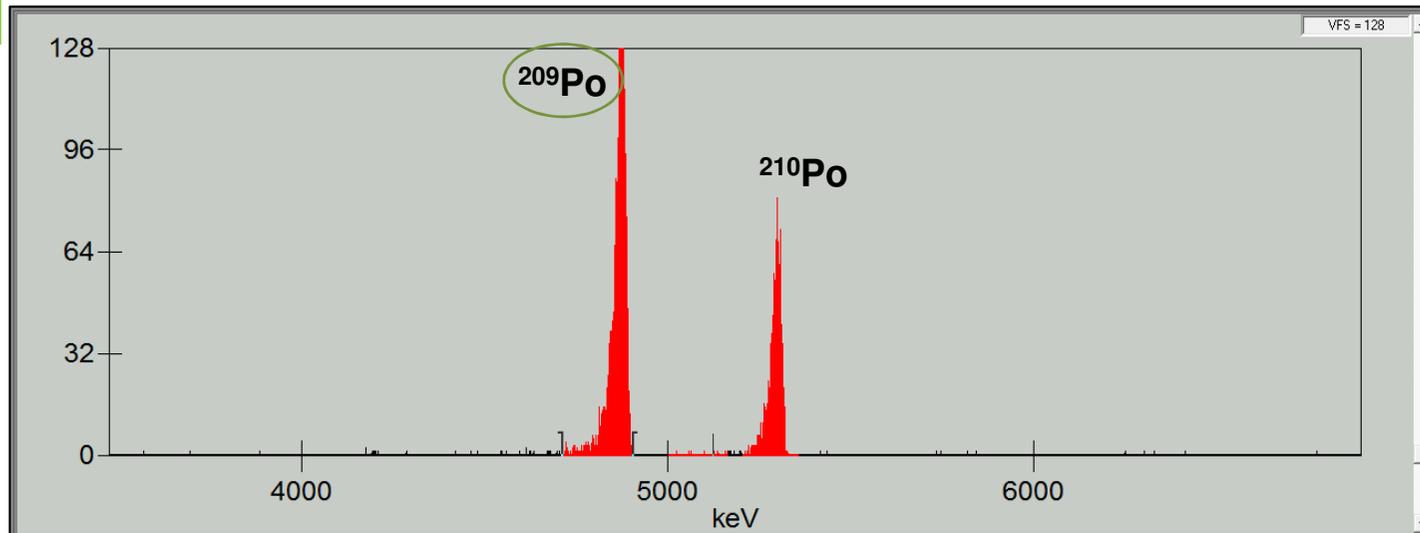


Extraktionschromatographie



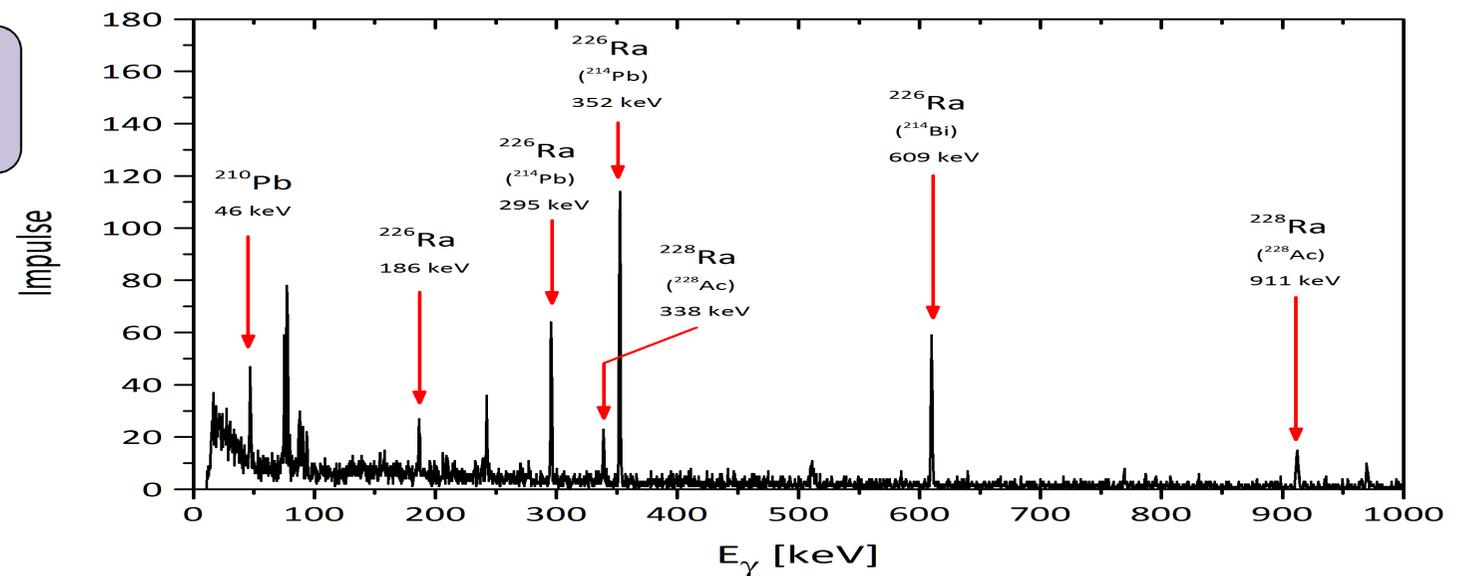
Flüssig-flüssig-Extraktion

SPEKTROMETRISCHE MESSUNGEN

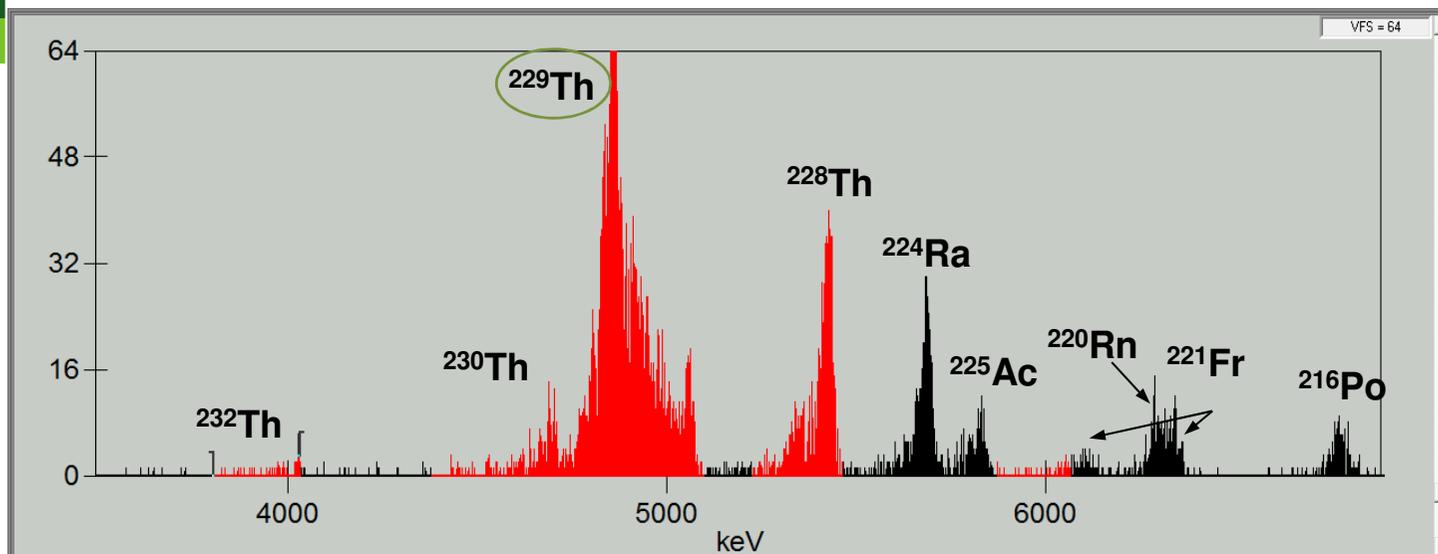


^{210}Po in Stuhlasche
Alphaspektrum

$^{226,8}\text{Ra}$ in Stuhlasche
Gammaspektrum

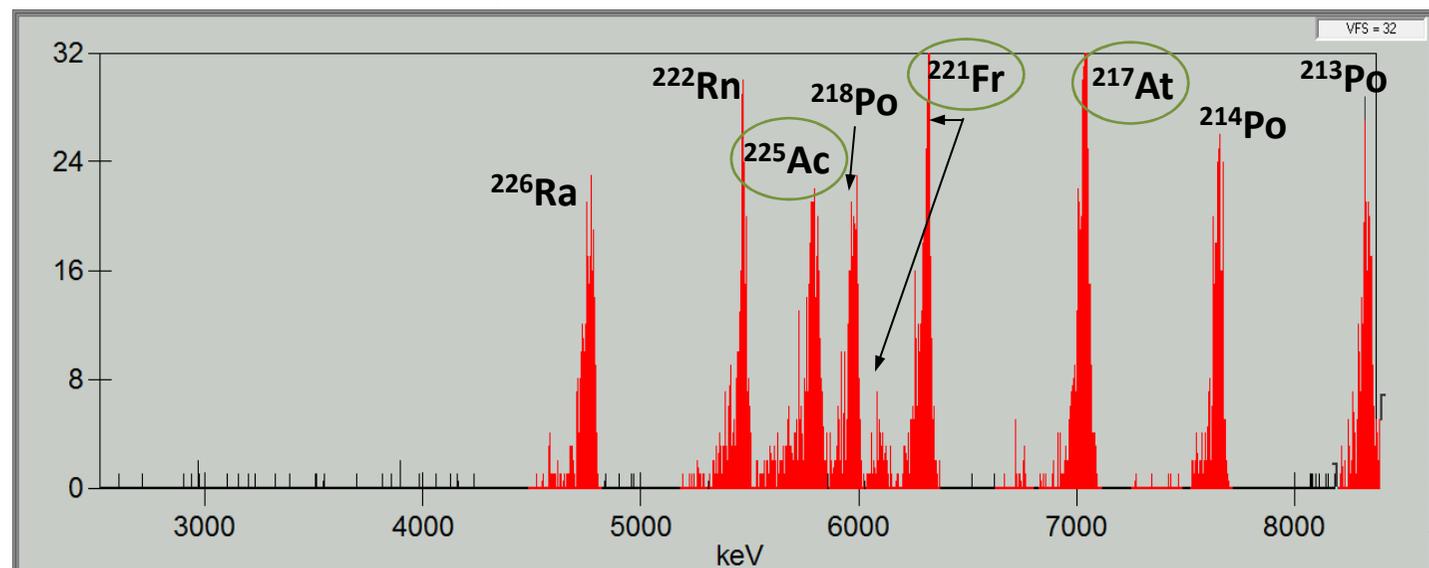


SPEKTROMETRISCHE MESSUNGEN



^{228}Th in Stuhlasche
Alphaspektrum

^{226}Ra in Stuhlasche
Alphaspektrum



METHODENENTWICKLUNG

Bestimmung von ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Kenndaten der sequentiellen Methoden

Reihe	Radionuklid	Urin			Stuhl		
		g^* mBq d ⁻¹	u	η	g^* mBq d ⁻¹	u	η
^{238}U	^{226}Ra	0,35	15 %	73 %	4,6	10 %	100 %
	^{210}Pb	9	20 %	100 %	20	20 %	100 %
	^{210}Po	0,9	15 %	79 %	2	15 %	80 %
^{232}Th	^{228}Ra	-	-	-	11	10 %	100 %
	^{228}Th	0,23	15 %	52 %	0,5	15 %	83 %

g^* – Erkennungsgrenze

u – Gesamtunsicherheit

η - Ausbeute

DURCHFÜHRUNG DER PROBANDENSTUDIE

Teilnehmer

Berufsgruppe: 3 Beschäftigte vom VKTA für den Bereich der Geothermie

Referenzgruppe: 6 Personen der Bevölkerung aus Raum München

- Alter: 25-55 Jahre
- männlich

- Nichtraucher
- keine Vegetarier

- ID: A1-3, R1-6

Planung

- 7 aufeinanderfolgende Tage
- „Diät“: Nahrungsmittel und Mineralwasser zur Verfügung
- 6 Tage Nahrungsaufnahme
- um 1 Tag versetzt Beginn der Sammlung von 24-h-Ausscheidung
- Beschäftigte: 3 Tage Reinigung von Wärmetauschern
- Protokollierung

DURCHFÜHRUNG DER PROBANDENSTUDIE

Zeitlicher Ablauf

1. Probenahmekampagne (PK1)

Tag	„Diät“	Reinigung	Proben
	A1-A3, R1-R6	A1-A3	
1	X	---	---
2	X	---	U, S
3	X	X	U, S
4	X	X	U, S
5	X	X	U, S
6	X	---	U, S
7	---	---	U, S

Durchführung:

- A1-A3: September 2012
- R1-R6: Februar 2013

2. Probenahmekampagne (PK2)

Tag	„Diät“	Reinigung	Proben
	AN1-AN3	AN1-AN3	
1	---	---	U, S
2	---	---	U, S
3	---	---	U, S

Durchführung:

- Beschäftigte
- 3 aufeinanderfolgende Tage
- ohne „Diät“
- kein Umgang mit nat. RN
- März 2014

→ „Nullwerte“ bzw. Referenzwerte

DURCHFÜHRUNG DER PROBANDENSTUDIE

Reinigung der Wärmetauscher



- ca. 30 Wärmetauscherplatte aus Titan
- Reinigung unter Vollschutz
- mechanisch mit Drahtbürste und Wasser
- Sammlung der Rückstände → Auftraggeber
- Messung der flächenbezogenen Aktivität vor und nach der Reinigung

Nuklid	Spezifische Aktivität
	[Bq g ⁻¹]
²²⁶ Ra (Ra226+)	5,4 ± 0,4 (7%)
²¹⁰ Pb (Pb-210+)	85 ± 5 (6%)
²²⁸ Ra (Ra-228+)	4,4 ± 0,4 (8%)
²²⁸ Th (Th-228+)	3,06 ± 0,20 (7%)

ANALYSENERGEBNISSE

Anzahl der Proben und Analysenwerte

Anzahl der 24-h-Ausscheidungsproben

		Urin	Stuhl	
A1-A3	PK1	18	15	
AN1-AN3	PK2	9	9	
R1-R6		45	32	
gesamt		72	56	128

Anzahl der Analysenwerte

	²¹⁰Pb		²¹⁰Po		²²⁶Ra		²²⁶⁺²²⁸Ra		²²⁸Th		
<i>Messmethode</i>	<i>PC</i>		<i>α</i>		<i>α</i>		<i>γ</i>		<i>α</i>		
Matrix	Urin	Stuhl	Urin	Stuhl	Urin	Stuhl	Urin	Stuhl	Urin	Stuhl	
A(N)1-A(N)3	27	24	27	24	27	---	---	24	27	24	204
R1-R6	45	32	45	32	45	---	---	32	45	32	308
gesamt	72	56	72	56	72	---	---	56	72	56	512

ANALYSENERGEBNISSE

24-h-Ausscheidungsmengen

Volumina aller 24-h-Urinproben (l)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
Gesamt	63	2,31	0,66	2,25	1,40	4,30

Frisch- und Aschemassen aller 24-h-Stuhlproben (g)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
Gesamt FM	56	157	96	148	12	541
Gesamt AM		5,1	2,8	5,0	0,7	13,2

- MW** – Mittelwert
Min/Max – untere/obere Grenze des Wertebereichs
FM – Frischmasse
AM – Aschemasse

ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Wertebereich der Ausscheidungsraten aller Probanden (mBq d^{-1})

	^{210}Pb	^{210}Po	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th
Urin	15 – 25	< NWG	0,3 – 2,8	---	0,3 – 1,2
Stuhl	8 – 536	< NWG	23 – 428	44 – 471	6 – 175

^{228}Ra : im Urin

- 2013/2014: keine zuverlässige Messmethode vorhanden

^{210}Po : ungestützt durch ^{210}Pb

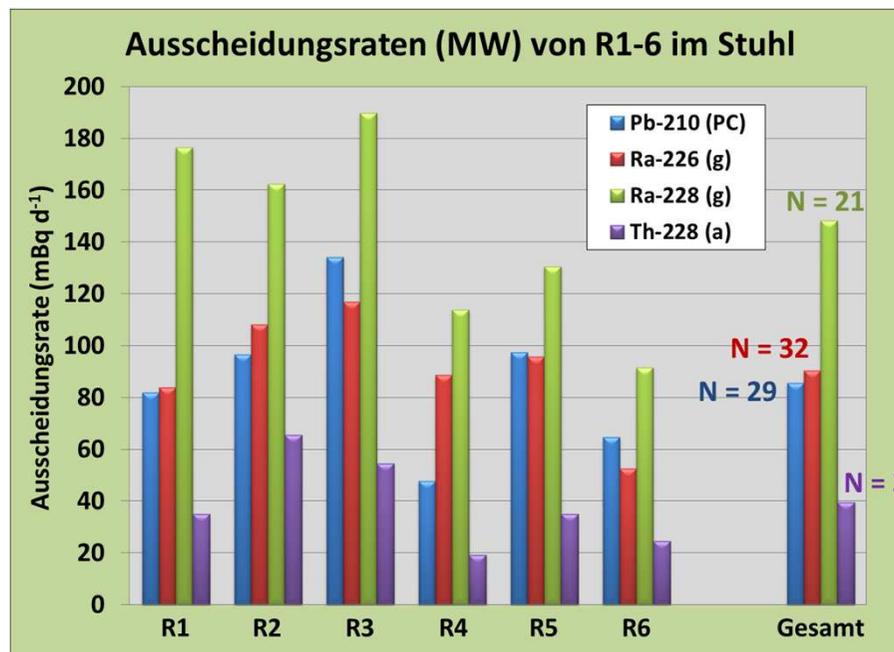
- Korrektur des ^{210}Po -Anteils durch ^{210}Pb -Zerfall
- Zeit zwischen Probenahme und Analyse wichtig
- NWG: korrigiert um Anteil durch ^{210}Pb -Zerfall

ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Ausscheidungsraten der Referenzpersonen R1-6 im Stuhl (mBq d^{-1})

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
^{210}Pb (PC)	29	85	70	69	8	307
^{226}Ra (γ)	32	90	43	84	23	182
^{228}Ra (γ)	21	148	71	146	44	297
^{228}Th (α)	31	39	24	37	6	116

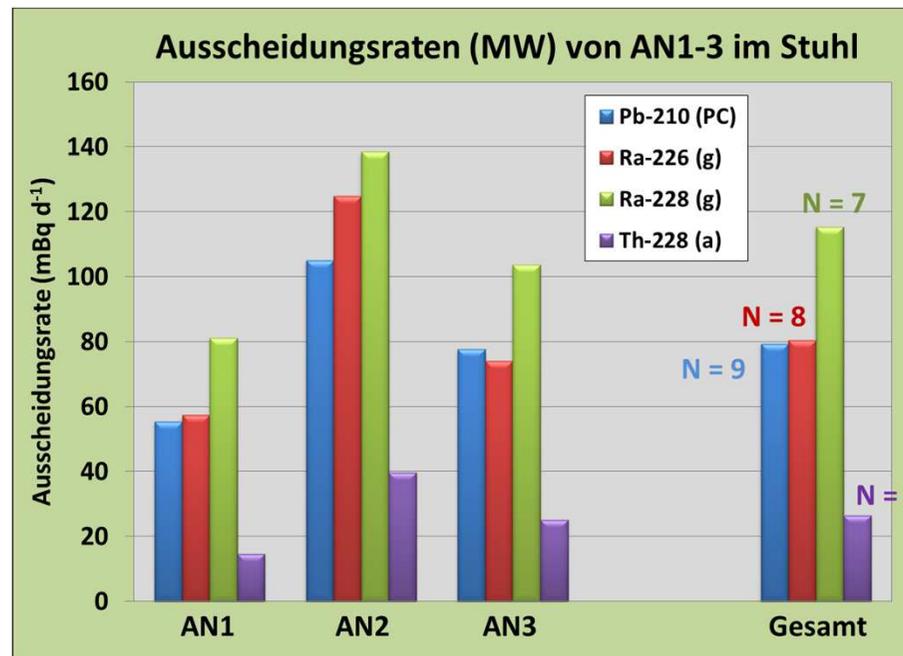


ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Ausscheidungsraten der Beschäftigten AN1-AN3 (PK2) im Stuhl (mBq d^{-1})

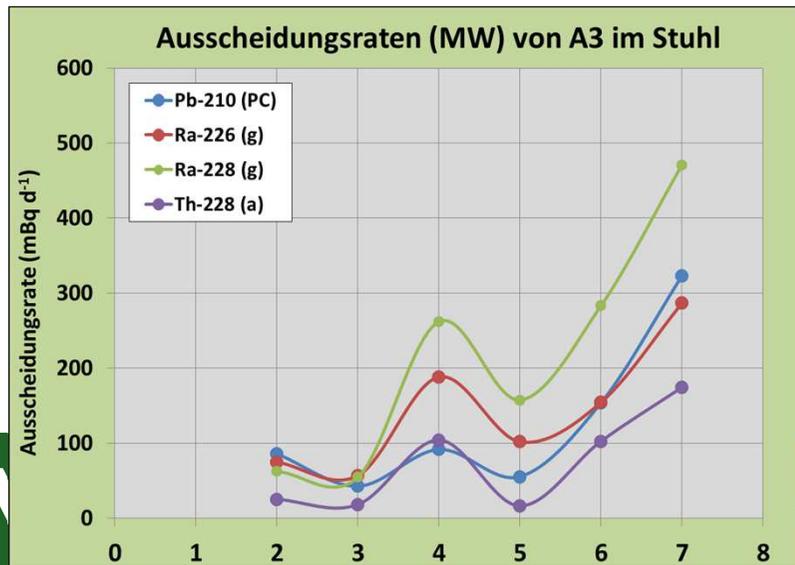
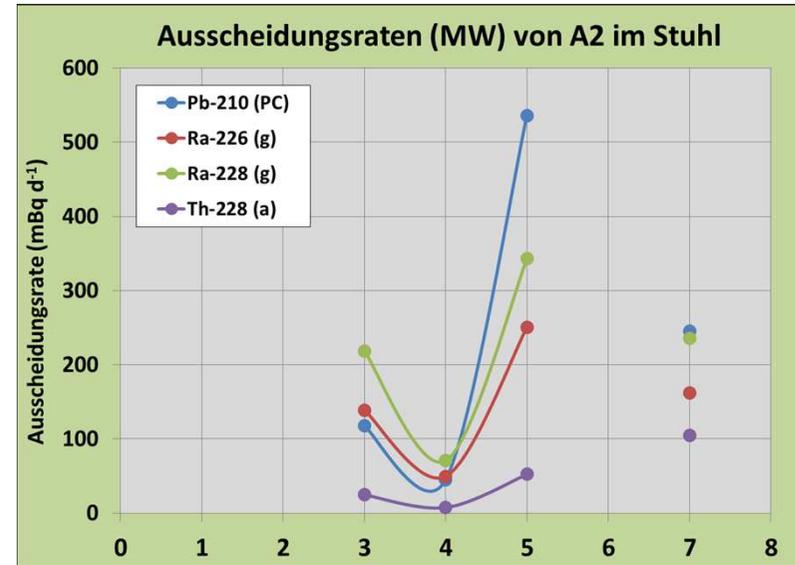
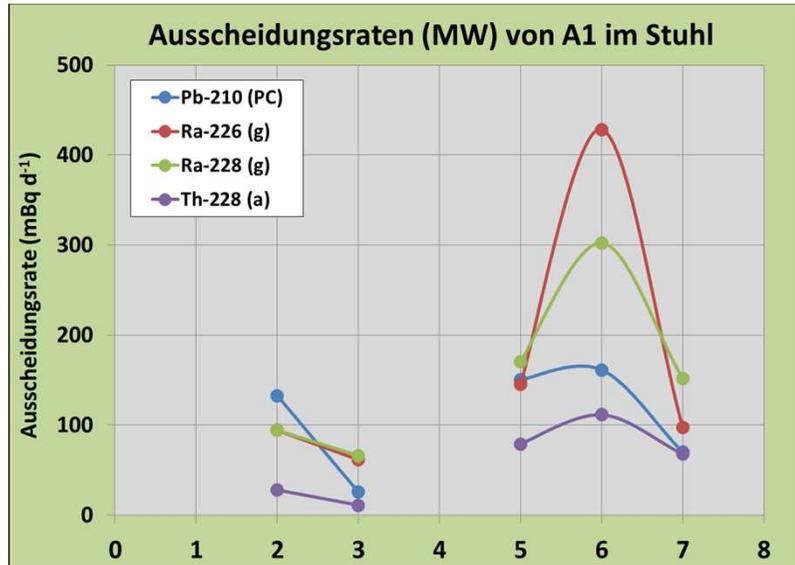
	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
^{210}Pb (PC)	9	79	42	59	40	183
^{226}Ra (γ)	8	81	33	67	47	159
^{228}Ra (γ)	7	115	40	104	73	203
^{228}Th (α)	9	27	16	21	10	67



ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Ausscheidungsraten der Beschäftigten A1-A3 (PK1) im Stuhl (mBq d^{-1})



Tag	„Diät“	Reinigung	Proben
	A1-A3, R1-R6	A1-A3	
1	X	---	---
2	X	---	U, S
3	X	X	U, S
4	X	X	U, S
5	X	X	U, S
6	X	---	U, S
7	---	---	U, S

ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Vergleich der Ausscheidungsraten (mBq d^{-1}) aller Probanden im Stuhl

^{210}Pb (PC)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
A1-3	15	149	129	117	26	536
AN1-3	9	79	42	59	40	183
R1-6	29	85	70	69	8	307

^{226}Ra (γ)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
A1-3	15	153	99	139	50	428
AN1-3	8	81	33	67	47	159
R1-6	32	90	43	84	23	182

ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Vergleich der Ausscheidungsraten (mBq d^{-1}) aller Probanden im Stuhl

^{228}Ra (γ)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
A1-3	12	230	117	227	71	471
AN1-3	7	115	40	104	73	203
R1-6	21	148	71	146	44	297

^{228}Th (α)

	Anzahl	MW	s_{MW}	Median	Min	Max
A1-3	15	62	48	52	7	175
AN1-3	9	27	16	21	10	67
R1-6	31	39	24	37	6	116

ANALYSENERGEBNISSE

^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in Urin und Stuhl

Abschätzung einer effektiven Folgedosis für die Beschäftigten A1-3

Annahmen

- einmalige Inkorporation während Sammelperiode innerhalb der Studie
- normalisierte Ausscheidungsraten E_s für die Mitte der Sammelperiode
- Aufnahme durch natürlichen Pfade nicht berücksichtigt (Referenzpersonen)

Dosisabschätzung

- grobe Schätzung aufgrund kleiner Datenbasis der Probandenstudie

Inhalation:

- 32 μSv

Ingestion:

- 2 μSv

→ 1-mSv-Kriterium nicht überschritten

ZUSAMMENFASSUNG

- **Analysenverfahren für typische NORM-Nuklidmuster verfügbar**
- ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th
- **Erprobung in Probandenstudie bei Reinigung von kontaminierten WT aus Geothermie**
- **mit ca. 500 Analysenwerten wurde die Datenbasis für die Streuung natürlicher RN in Ausscheidungen erweitert**

- **Strahlenschutz: im Stuhl der Beschäftigten A1-A3 erhöhte Werte von ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th im Vergleich zu Referenzpersonen**
- **Dosis: < 1 mSv, unabhängig vom Aufnahmepfad**

Vielen Dank !



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

- **Probanden**
- **allen Mitwirkenden im VKTA, Dresden**
- **Mitarbeiter des ISS, HMGU, München**

Abschlussbericht BMBF 02NUK015G: TIB Hannover

<http://www.tib.uni-hannover.de/>