



Überwachung der Radioaktivität von landwirtschaftlichen Produkten

Bearbeiter: W. Feldt, ehem. Bundesforschungsanstalt für Fischerei, Hamburg
J. Narrog, Hesel, ehem. Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg, Stuttgart
H. Völkle, Bundesamt für Gesundheit, Fribourg, Schweiz
Chr. Wilhelm, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
2.1	Messgröße.....	1
2.2	Maßeinheit.....	1
2.3	Zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
3	Messverfahren.....	3
3.1	Probenentnahme.....	3
3.2	Probenvorbereitung.....	3
3.2.1	Pflanzliche Produkte.....	3
3.2.2	Flüssigkeiten wie Obstsaften und Wein.....	4
3.3	Messung einschließlich Kalibrierung.....	4
3.4	Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze.....	4
4	Bewertung des Verfahrens.....	4
5	Dokumentation.....	5
6	Bemerkungen.....	5
7	Literatur.....	5

1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Zweck der Überwachungsmaßnahme ist die Kontrolle der über landwirtschaftliche Produkte in der Umgebung einer kerntechnischen Anlage der menschlichen Ernährung zugeführten zusätzlichen Radioaktivität. An dieser Stelle nicht näher erörtert wird die Milch, die wegen ihrer Bedeutung gesonderte Abhandlung erfordert, und Fleisch, dessen Überwachung nicht vorgesehen ist.

Bevorzugt werden Blattgemüse, wie z. B. Kopfsalat und Kohl, weil es eine relativ große Auffangfläche für die radioaktiven Stoffe aus der Luft darstellt (das gleiche gilt auch bei künstlicher Bewässerung durch Beregnung) und ausgesprochen ortsspezifische Produkte, wie z. B. Äpfel, Tabak, Wein, Mais, Honig.

2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze

2.1 Messgröße

Messgröße ist die spezifische Aktivität einzelner relevanter Radionuklide, bei Flüssigkeiten, wie z. B. Obstsaften und Wein, außerdem die Tritiumaktivitätskonzentration.

2.2 Maßeinheit

Die Maßeinheiten sind Bq/kg Frischmasse bei Feststoffen bzw. Bq/L bei Flüssigkeiten.

2.3 Zu fordernde Nachweisgrenze

Ausgehend vom deutschen sogenannten 0,3/0,9-mSv-Konzept bzw. dem schweizerischen 0,2/0,6-mSv-Konzept und der Forderung, auf jedem Expositionspfad insgesamt mindestens 1/3 davon sicher nachweisen zu können, ergibt sich für die zehn wichtigsten in den Lebensmitteln möglicherweise enthaltenen Radionuklide pro Nuklid eine Mindestnachweisgrenze der spezifischen Aktivität, die z. B. einer effektiven Äquivalentdosis von $1 \cdot 10^{-5}$ Sv oder einer Schilddrüsendosis von $3 \cdot 10^{-5}$ Sv entspricht.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.11

Seite: 2 von 5

Stand: August 2017

Die spezifische Aktivität, die diesen Dosen entspricht, kann aufgrund folgender Beziehung errechnet werden:

$$C_r = \frac{E_{g,r}}{g_{g,r} \cdot U} \quad (1)$$

Dabei ist:

C_r = spezifische Aktivität des Nuklids r in Lebensmitteln in Bq/kg FM,

FM = Frischmasse,

$E_{g,r}$ = Effektive Dosis durch Ingestion des Nuklids r in Sv,

$g_{g,r}$ = Dosiskoeffizient [2] für die interne Exposition durch Ingestion des Nuklids r in Sv/Bq

U = jährliche Verzehrsmenge der "Referenzperson" nach Anlage VII in [8]: Bei langlebigen Radionukliden kann dabei konservativ die gesamte Ingestion (Wasser, Milch, Fleisch, Fisch, pflanzliche Nahrung), multipliziert mit den jeweiligen Sicherheitsfaktoren der Lebensmittelgruppen, d. h. rd. 2000 kg für Erwachsene und rd. 1100 kg für Kleinkinder (>1 – ≤2Jahre) angesetzt werden, woraus sich für alle Lebensmittel einschließlich Trinkwasser die gleiche niedrige zu fordernde Nachweisgrenze ergibt.

Somit errechnet sich z. B. als zu fordernde Nachweisgrenze:

für Co-60: (Rechnung für Erwachsene)

$$a_{Co-60}^{\#} = \frac{1 \cdot 10^{-5} \text{ Sv}}{3,4 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq} \cdot 2 \cdot 10^3 \text{ kg FM}} \approx 1,5 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}} \quad (2)$$

für Sr-90: (Rechnung für Erwachsene)

$$a_{Sr-90}^{\#} = \frac{1 \cdot 10^{-5} \text{ Sv}}{2,8 \cdot 10^{-8} \text{ Sv/Bq} \cdot 2 \cdot 10^3 \text{ kg FM}} \approx 0,2 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}} \quad (3)$$

(Rechnung für Kleinkinder)

$$a_{Sr-90}^{\#} = \frac{1 \cdot 10^{-5} \text{ Sv}}{7,3 \cdot 10^{-8} \text{ Sv/Bq} \cdot 1,1 \cdot 10^3 \text{ kg FM}} \approx 0,1 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}} \quad (4)$$

In der nachfolgenden Tabelle sind die berechneten Nachweisgrenzen, den geforderten Nachweisgrenzen der REI [9] gegenüber gestellt:

Tab. 1: Gegenüberstellung der aus der Dosis berechneten erforderlichen Nachweisgrenzen zu den in der REI [9] geforderten Nachweisgrenzen.

	NWG aus Berechnung	Geforderte NWG aus REI
Co-60	$\approx 1,5 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}}$	$0,2 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}}$
Sr-90	$\approx 0,2 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}}$ für Erwachsene $\approx 0,1 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}}$ für Kleinkinder	$0,04 \frac{\text{Bq}}{\text{kg FM}}$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.11

Seite: 3 von 5

Stand: August 2017

3 Messverfahren

3.1 Probenentnahme

Die Probenentnahme erfolgt zur Erntezeit. Mindestens 1 kg Frischmasse der essbaren Substanz ist erforderlich. Die Frischmassenbestimmung sollte vor Ort erfolgen. Die Proben werden in Plastikbeuteln oder -behältern transportiert und bis zur Verarbeitung erforderlichenfalls tiefgefroren.

Wein braucht erst nach Abschluss des Gärungsprozesses, d. h. als Fertigprodukt, im folgenden Frühjahr genommen zu werden. Für eine Tritiumbestimmung genügen 50 ml. Falls eine Sr-90-Bestimmung durchgeführt werden soll, wird 1 L Wein benötigt, ebenso für die γ -Spektrometrie.

3.2 Probenvorbereitung

3.2.1 Pflanzliche Produkte

Vor der eigentlichen Probenaufbereitung sind die nicht essbaren Teile der Pflanze abzutrennen und zu verwerfen. Eine besondere Probenaufbereitung ist lediglich zur Messung der Sr-90-Aktivität erforderlich.

Zur Reduktion des Probenvolumens können Gemüse und Früchte (letztere vorher zerkleinern) im Ofen oder unter der IR-Lampe bei 105 °C getrocknet werden. Da die meisten Gemüse sehr hohe Wassergehalte aufweisen (s. Tab. 2), kann durch Trocknen das Probenvolumen stark reduziert und damit die Messgeometrie für die Gammaskopie verbessert werden, was zu kürzeren Messzeiten führt. Die Probe kann anschließend durch Mahlen homogenisiert werden. Die Messung erfolgt am besten in Ringschalen von 1 l Volumen. Falls die Proben getrocknet und verascht werden, eignen sich 50-ml-Kautexflaschen für die Messung besser. Für eine spätere Sr-90-Analyse ist eine Veraschung erforderlich (Loses Blatt Nr. 3.1.17). Die Veraschung ist auch für die gammaskopimetrische Analyse vorteilhaft, da eine weitere Konzentrierung der Aktivität erfolgt.

Tab. 2: Mittelwerte und Streubreiten der Massenverhältnisse von Trocken- zu Frischmasse und Aschen- zu Trockenmasse für verschiedene landwirtschaftliche Produkte. Als Datenbasis für diese Tabelle dienen die Ergebnisse des Routine-Überwachungsprogramms für die Umgebung des Forschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1993 – 2003 für rund 300 Proben.

	Massenverhältnis Trocken/Frisch			Massenverhältnis Asche/Trocken		
	Mittelwert	Minimum	Maximum	Mittelwert	Minimum	Maximum
Spinat	0,066	0,044	0,094	0,20	0,11	0,35
Kopfsalat	0,046	0,024	0,085	0,14	0,066	0,24
Feldsalat	0,069	0,050	0,094	0,18	0,12	0,31
Rot-/Weißkohl	0,075	0,032	0,15	0,097	0,052	0,15
Kartoffeln	0,20	0,14	0,26	0,037	0,010	0,056
Möhren	0,11	0,086	0,17	0,065	0,024	0,130
Spargel	0,060	0,051	0,070	0,061	0,045	0,085
Roggen	0,89	0,86	0,95	0,019	0,013	0,033
Weizen	0,89	0,84	0,93	0,018	0,014	0,023
Äpfel	0,14	0,11	0,17	0,014	0,003	0,026
Bewuchs (vorwiegend Gras)	0,20	0,079	0,39	0,12	0,068	0,21



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.11

Seite: 4 von 5

Stand: August 2017

3.2.2 Flüssigkeiten wie Obstsäfte und Wein

Für die gammaspektrometrische und radiochemische Analyse empfiehlt es sich, die Probe gefrierzutrocknen. Die so stark konzentrierte Aktivität kann direkt gammaspektrometriert werden. Um eine Sr-90-Analyse durchführen zu können, muss der Rückstand bei 600 bis 800 °C verascht werden. Der weitere Trennungsgang erfolgt wie im Losen Blatt Nr. 3.1.17. Für die H-3-Bestimmung sind Saft- und Weinproben zu destillieren.

3.3 Messung einschließlich Kalibrierung

Die Aktivitätsmessung relevanter Gammastrahler sollte an einem Gammaspektrometriemessplatz, der mit einem Halbleiterdetektor (HPGe) ausgestattet ist, erfolgen. Für die meisten Messzwecke ist ein Hochenergie-detektor mit einem Messbereich von 40 keV bis 2000 keV ausreichend. Die Proben werden in kalibrierten Messgefäßen gemessen. Laborinterne und –externe qualitätssichernde Maßnahmen sollen regelmäßig durchgeführt werden (siehe Loses Blatt 5.2). Die Sr-90-Aktivität ist nach radiochemischer Abtrennung mit einem Antikoinzidenzzähler zu bestimmen (siehe Loses Blatt Nr. 3.1.17). Die Tritiumaktivität ist mit einem Flüssigszintillationsspektrometer zu messen (siehe Lose Blätter Nr. 3.1.12.2 und 3.1.13).

3.4 Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze

Bezüglich der Betrachtung des Unsicherheitsbudgets ist zu unterscheiden zwischen einer statistischen Messunsicherheit (Typ A Unsicherheit), der vom Radionuklid und dessen Aktivität in der Probe abhängig ist, und weiteren systematischen Unsicherheiten, die durch die Probenaufbereitung und –Positionierung sowie durch die Detektorkalibrierung der entsprechenden Messgeometrie bedingt ist.

Die erreichbare Nachweisgrenze hängt von der Zählstatistik, der Abschirmung und dem verwendeten Messgerät ab. Sie liegt bei den üblicherweise verwendeten Geräten mit ca. 30-40% Effizienz

- für gammaspektrometrische Messungen mit Ge-Detektoren unter 0,2 Bq/kg FM, bezogen auf Co-60 bei der Verarbeitung von 1 kg Probenmaterial und 1000 Minuten Messzeit;
- für die Sr-90-Aktivität bei ca. 0,04 Bq/kg FM bei der Verarbeitung von 1 kg Probenmaterial und 100 Minuten Messzeit;
- für die Tritiumaktivität bei ca. 10 Bq/kg mit Probe-zu-Cocktail-Verhältnissen von 10:10 ml und einer Messzeit von 100 Minuten und vernachlässigbaren Farbquenchen (wie z.B. bei Trinkwasser)

4 Bewertung des Verfahrens

Die hier beschriebenen Mess- und Analysenverfahren eignen sich für alle in der Umwelt auftretenden Aktivitätspegel.

Der Zeitbedarf ist abhängig von der Probenmenge, Probenvorbereitung und den erforderlichen chemischen Trennungsarbeiten. Als Richtgrößen seien angegeben für die

- direkte Gammaspektrometrie 8 Stunden,
- Trocknung der Proben und nachfolgende Gammaspektrometrie 2 Tage,
- Trocknung und Veraschung der Proben mit nachfolgender Gammaspektrometrie 5 Tage,
- Trocknung und Veraschung mit nachfolgender Sr-90-Analyse 11 Tage,
- Destillation mit nachfolgender H-3-Bestimmung 8 Stunden.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
**EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT**

Blatt: 3.1.11

Seite: 5 von 5

Stand: August 2017

5 Dokumentation

Die Dokumentation sollte mindestens die folgenden Informationen enthalten:

Probenbeschreibung, Probenentnahmeort, Probenentnahmezeitpunkt, Probenvorbereitungsschritte, Massenverhältnis Trocken- zu Frischmasse und Aschen- zu Trockenmasse, ggf. chemische Probenaufbereitungsschritte und chemische Ausbeute, Messdatum, Radionuklid, Aktivität, Messunsicherheit, erreichte Nachweisgrenzen und Erkennungsgrenzen.

Mehr Informationen und weitere Hinweise finden sich im Losen Blatt 2.4 dieser Loseblattsammlung.

6 Bemerkungen

Da die Messgeometrien eines Germanium-Detektors in der Regel mit Standardlösungen kalibriert werden, ist bei der Messung von Proben, die eine andere Dichte und Materialzusammensetzung als die Kalibrierlösung haben, eine Korrektur der Aktivität bezüglich der Absorption in der Probe erforderlich. Die Messergebnisse können unter Zuhilfenahme von Korrekturprogrammen hinsichtlich Material und Dichte korrigiert werden. Andererseits besteht die Möglichkeit anstelle der Kalibrierung mit Standardlösungen mathematische Kalibrierungen für die vorliegende Messgeometrie, das jeweilige Material und die bei der Messung vorliegende Schüttdichte vorzunehmen [7]. Für sogenannte charakterisierte Detektoren können diese Korrekturen auch vollautomatisch mit Spezial-Software berechnet werden (z.B. ISOCS/LabSOCS).

Beim Trocknen und Veraschen der Proben ist zu beachten, dass sich einige Elemente - insbesondere Iod ab etwa 110° bis 120°C und Cäsium ab 500 °C - verflüchtigen können. Dies ist entweder durch genaue Einhaltung bestimmter oberer Temperaturen - z. B. 105 °C bei der Trocknung - oder gegebenenfalls durch entsprechende gesonderte Bestimmungen zu berücksichtigen.

7 Literatur

- [1] H. Kiefer und R. Maushart, Strahlenschutzmeßtechnik, Verlag G. Braun, Karlsruhe (1964)
- [2] Bekanntmachung der Dosiskoeffizienten zur Berechnung der Strahlenexposition, Bundesanzeiger Nr. 160 vom 23. Juli 2001, Beilagebände 160a und 160b
- [3] K. Bächmann, Messung radioaktiver Nuklide, Verlag Chemie (1970)
- [4] W. W. Bowmann and K. W. MacMurdo, Radioactive Decay Gammas ordered by Energy and Nuclide, Atomic Data and Nuclear Data Tables, Vol. 13, Nos. 2-3, Academic Press, New York and London (February 1974)
- [5] EML Procedure Manual (früher: HASL-Manual); herausgegeben von J. H. Harley, Environmental Measurement Laboratory, U. S. Department of Energy, New York, mit laufenden Ergänzungen bis August 1979 (1957)
- [6] Radiological Health Handbook, U. S. Department of Health, Education and Welfare
- [7] S. Kaminski et al., Mathematical efficiency calibration in gamma spectroscopy, Kerntechnik Ausgabe 68/4 S.140, 2003
- [8] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) vom 20. Juli 2001 (BGBl. I, S.1714), <http://www.bfs.de/>
- [9] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, GMBI. Nr. 29 vom 19.08.1993, S. 502-528 (mit den Anhängen A und D) und GMBI. Nr. 9/10 vom 20.03.1996, S. 195-246 (mit den Anhängen B, C1 und C2).

Bitte beachten Sie den Hinweis im Losen Blatt 1.3 „Erläuterungen zur Loseblattsammlung“.