ISSN 1013-4506

FS-07-143-AKNAT

Fachverband für Strahlenschutz e.V.

Mitgliedsgesellschaft der International Radiation Protection Association (IRPA) für die Bundesrepublik Deutschland und die Schweiz

Publikationsreihe FORTSCHRITTTE IM STRAHLENSCHUTZ

Publication Series PROGRESS IN RADIATION PROTECTION

OPTIMIERUNG DER AUSWAHL VON MESSMETHODEN ZUR BESTIMMUNG NATÜRLICHER RADIONUKLIDE

T. Heinrich
L. Funke
M. Köhler
U.-K. Schkade
F. Ullrich
W. Löbner
J. Höpner
D. Weiß

Bibliografische Informationen der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie. Detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über http://dnb.ddb.de abrufbar.

Die Inhalte dieses Werkes wurden von Verlag, Herausgebern und Autoren nach bestem Wissen und Gewissen erarbeitet und zusammengestellt. Eine rechtliche Gewähr für die Richtigkeit der einzelnen Angaben kann jedoch nicht übernommen werden. Gleiches gilt auch für die Websites, auf die über Hyperlink verwiesen wird. Es wird betont, dass wir keinerlei Einfluss auf die Inhalte und Formulierungen dieser Seiten haben und auch keine Verantwortung für Sie übernehmen. Grundsätzlich gelten die Wortlaute der Gesetzestexte und Richtlinien sowie die einschlägige Rechtsprechung.

Gedruckt auf chlorfrei gebleichtem Papier.

ISSN 1013-4506
ISBN 978-3-8249-1066-3

© by TÜV Media GmbH, TÜV Rheinland Group, Köln 2007
® TÜV, TUEV und TUV sind eingetragene Marken der TÜV Rheinland Group. Eine Nutzung und Verwendung bedarf der vorherigen Zustimmung durch das Unternehmen.
Gesamtherstellung: TÜV Media GmbH, Köln 2007
Printed in Germany 2007

Inhalt

Seite

1. Zielsetzung 3

2. Natürliche Radionuklide 3

3. Messaufgaben zur Bestimmung natürlicher Radionuklide 4

4. Anforderungen an die Messverfahren (erforderliche Nachweisgrenzen, Grenz- und Richtwerte) 5

5. Messverfahren und Messgrößen 6

6. Optimierung der Methodenauswahl 7

6.1 Luft (Schwebstaub) 9

6.2 Wasser 9

6.3 Böden, Sedimente, Rückstände, technische Medien 10

6.4 Biomedien 11

6.5 Integrierende Vor-Ort-Methoden 12

Literatur 13

OPTIMIERUNG DER AUSWAHL VON MESSMETHODEN ZUR BESTIMMUNG NATÜRLICHER RADIONUKLIDE

1. Zielsetzung

Die Bestimmung natürlicher Radionuklide (Kapitel 2) in Umweltmedien ist eine komplexe Fragestellung, bei der der Optimierung der Auswahl der Messmethoden insoweit besondere Bedeutung zukommt, als dass die Methodik den finanziellen und zeitlichen Aufwand und natürlich auch die Aussagekraft des Ergebnisses mitbestimmt.

Diese Ausarbeitung ist eine Empfehlung für Auftraggeber von Messungen und bedingt auch für Neueinrichter oder Umrüster von Laboren, die darlegt, welche Messaufgaben unter welchen Randbedingungen gesetzlich geregelt vorkommen und wie man zu einer optimierten Messstrategie gelangen kann.

Das erstellte Tabellenwerk erläutert die gesetzlich geregelten Messaufgaben zur Bestimmung natürlicher Radionuklide, mit Ausnahme der Messung von Radon und seinen kurzlebigen Folgeprodukten und mit Ausnahme der dosimetrischen Überwachung von Arbeitnehmern (Kapitel 3). Zur Optimierung der Messmethodik sind natürlich die Randbedingungen in Form von geforderten Nachweisgrenzen und einzuhaltenden Richt- oder Grenzwerten notwendig (Kapitel 4). Ferner ist es notwendig zu wissen, welche Messgrößen mit welchen Messverfahren bestimmbar sind (Kapitel 5). Diese Informationen müssen für den einzelnen Anforderungsfall konkretisiert werden, um daraus eine für das Labor optimierte Messstrategie abzuleiten (Kapitel 6).

2. Natürliche Radionuklide

In der Natur kommen zwei verschiedene Arten von Radionukliden vor: zum einen die durch kosmische Strahlung erzeugten Nuklide, wie z.B. ^{3}H, ^{7}Be und ^{14}C, und zum anderen langlebige radioaktive Urnuklide, welche bei der Erdbildung entstanden, heute noch existieren und als „primordiale Nuklide" bezeichnet werden [1]. Im Folgenden werden nur die primordialen Radionuklide und ihre Tochternuklide betrachtet, wobei hier wiederum der Fokus auf die Uranium-, Actinium- und Thoriumreihe sowie ^{40}K gerichtet sein wird. Wie in Abbildung 1 zu erkennen ist, zerfallen die Mutternuklide ^{238}U, ^{235}U und ^{232}Th in einem mehrstufigen Prozess zu den stabilen Blei-Isotopen.

Dabei treten sowohl der Alpha- als auch der Betazerfall auf, welche teilweise durch die Emission von Gammaquanten begleitet werden [1,2]. Der Alphazerfall und die Emission von Gammaquanten sind mit charakteristischen nuklidspezifischen Energien und Emissionswahrscheinlichkeiten verbunden, so dass im Rahmen der energieauflösenden Alpha- und Gammaspektrometrie die Aktivität der jeweiligen Radionuklide innerhalb der Zerfallsreihen bestimmt werden kann. Der Betazerfall dagegen ist ein Zerfall, in welchem das Betateilchen zwar auch mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit emittiert wird, aber die Energie des Betateilchens bis zu einem nuklidspezifischen Maximum kontinuierlich verteilt ist.

3. Messaufgaben zur Bestimmung natürlicher Radionuklide

Die Tabelle 1 enthält Angaben zu den gesetzlich geregelten Messaufgaben zur Bestimmung natürlicher Radionuklide.

Die Überwachung bergbaulicher Tätigkeiten ist in der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung bergbaulicher Tätigkeiten (REI-Bergbau) [3] geregelt. In den Anhängen der REI-Bergbau werden die zu überwachenden Medien und die erforderlichen Nachweisgrenzen zusammengestellt. Da die Messungen gemäß REI-Bergbau die Berechnung einer möglichen Strahlenexposition auf der Grundlage von Messwerten ermöglichen sollen, ist es notwendig, für die Auslegung der Messtechnik die sogenannten Hintergrundwerte der Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlagen-Bergbau [4]) zu beachten. Die REI-Bergbau verweist auf einschlägige Messverfahren aus den „Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen" [5]. Sie eröffnet jedoch zugleich die Möglichkeit, gleichwertige Messverfahren zur Anwendung zu bringen. Die REI-Bergbau wird von den zuständigen Genehmigungsbehörden zur Beurteilung von Messprogrammen bei der Genehmigungserteilung und von den zuständigen Aufsichtsbehörden zur Beurteilung der Strahlensituation herangezogen. Die bekanntesten Anwendungsfälle sind die aufsichtlichen Anordnungen der thüringischen und sächsischen Behörden zum Basisprogramm der Wismut GmbH an deren Sanierungsstandorten [6,7].

Die Überwachung der Strahlenexposition bei Arbeiten ist im Teil III der Strahlenschutzverordnung [8] geregelt. Eine Richtlinie ist hierzu am 01.03.2004 in Kraft getreten [9]. Die darin geschilderte dosimetrische Überwachung des Arbeitsnehmers ist nicht Gegenstand dieser Ausarbeitung, da dies die Aufgabe des eng eingegrenzten Kreises der Personendosismessstellen ist. Für Labore wie die behördlichen Landesmessstellen oder auch für kommerzielle Anbieter besteht jedoch die Fragestellung darin, die mögliche Strahlenexposition abzuschätzen, um dann zu einer Entscheidung zu kommen, ob die Arbeiten zu überwachen sind oder nicht (Kapitel 3 der Richtlinie). Neben der Untersuchung der von diesen Arbeiten stammenden Rückständen und der Bestimmung der möglichen Strahlenexposition kann es in Einzelfällen sinnvoll sein, ergänzend die Ausgangsmaterialien zu untersuchen. Da diese Ausarbeitung generell das Thema der Radonmessungen ausklammert, sind unter den hier gemeinten Arbeiten nur die nicht von Radon- oder Thoronexpositionen dominierten Arbeiten zu verstehen. Zur Problematik der Radonmessung sei unter anderem auf die Loseblattsammlung des FS verwiesen (www.fs-ev.de).

Ebenso wie die Überwachung von Arbeiten ist auch die Überwachung von Rückständen in der Strahlenschutzverordnung geregelt. Die gesetzlich geregelten Rückstände sind in der Anlage XII der Strahlenschutzverordnung aufgeführt. Bekanntestes Beispiel sind hier die Schlämme und Ablagerungen aus der Gewinnung von Erdöl und Erdgas.

Eine vergleichsweise neue Problematik sind die gesetzlichen Regelungen zu Wässern im Lebensmittelrecht. Während bisher aufgrund der Strahlenschutzverordnung Sorge dafür getragen wurde, die Belastung der Bevölkerung durch Anwendung radioaktiver Stoffe zu minimieren, so wird neuerdings z.B. durch die novellierte Trinkwasserverordnung [10] dafür gesorgt, dass auch die Strahlenexposition der Bevölkerung durch natürlich radioaktive Stoffe überwacht wird und unter der vorgegebenen Richtdosis bleibt. Gemäß der novellierten Trinkwasserverordnung und der sogenannten Radonempfehlung der Kommission [11] sind Trinkwässer in Zukunft auf natürliche Radionuklide zu überwachen. Ebenso bedarf es bei den

Mineral- und Tafelwässern Untersuchungen zum natürlichen Radionuklidgehalt [12]. Bisher ist besonders die Trinkwasserverordnung noch nicht im Detail mit Parameterwerten untersetzt, so dass in dieser Ausarbeitung lediglich auf einen Entwurf der EU-Kommission [13] Bezug genommen werden kann. Solange es keine verbindlichen Vorgaben gibt, wird empfohlen, Messwerte mit den amtlichen Dosisfaktoren und Verzehrsmengen zu bewerten und diese gesondert zu dokumentieren (besonders die Altersgruppe, auf die Bezug genommen wird und die verwendete Verzehrsmenge).

Die radiologische Umweltbewertung hat die Abschätzung der Strahlenexposition der Beschäftigten und insbesondere der Bevölkerung zum Gegenstand. Die Bewertungsgröße ist in der Regel die effektive Dosis. Hierbei handelt es sich um eine Größe, die durch Messung nicht direkt ermittelt werden kann. Ihre Bestimmung verlangt die Verwendung von Expositionsmodellen. Im konkreten Anwendungsfall sind die tatsächlich relevanten Szenarien und Expositionspfade zu berücksichtigen. Aktivitätskonzentrationen, spezifische Aktivitäten in den Umweltmedien Boden, Wasser und Luft und die Ortsdosisleistung der Gammastrahlung sind notwendige Ausgangsdaten. Spezifische Aktivitäten oder Aktivitätskonzentrationen in Biomedien werden in der Regel berechnet, so dass Messungen in Biomedien keine notwendige Voraussetzung zur Abschätzung von Strahlenexpositionen darstellen. Erforderliche Nachweisgrenzen für die jeweiligen Messgrößen richten sich im Einzelfall danach, ob der Nachweis der Strahlenexposition < 1 mSv/a mit hinreichender Sicherheit möglich ist. Es sind im Einzelfall alle dosisrelevanten Nuklide zu berücksichtigen. Für die Bewertung der Auswirkungen von radioaktiven Stoffen auf die Bevölkerung ist es vor allem im Hinblick auf natürlich vorkommende Radionuklide notwendig, die in der Umgebung vorkommenden Hintergrundwerte zu kennen. Ausgehend davon kann die durch Arbeiten zusätzlich bedingte Exposition auf der Basis entsprechender Modelle ermittelt und mit dem primären Richtwert von 1 mSv/a verglichen werden. Daher sind die natürlichen Hintergrundwerte auch ein wesentlicher Anhaltspunkt für messtechnisch zu erreichende Nachweisgrenzen.

Die Bewertung von Baustoffen stellt insoweit einen Sonderfall dar, als dass der Leitfaden Strahlenschutz 112 (RP 112) [14] bisher noch nicht in nationales Recht umgesetzt wurde. Zugleich unterscheidet sich die in dem Leitfaden angeführte Vorgehensweise von den Regelungen zu Rückständen, so dass es den Autoren als sinnvoll erschien, diesen Bereich gesondert aufzuführen. Die RP 112 ist eine Empfehlung, für deren nationale Umsetzung große Freiräume gegeben sind. Ein Zeitrahmen dafür wurde nicht gesetzt. In Deutschland ist diese Empfehlung noch nicht rechtsverbindlich. Die RP 112 kann aber zumindest ein gutes Instrument zur Abschätzung der mit der Verwertung überwachungsbedürftiger Rückstände verbundenen effektiven Dosis darstellen. Bei einer rechtsverbindlichen Umsetzung und der Anwendung z.B. im Verfahren der bauaufsichtlichen Zulassung von Baumaterialien wären auch Fragen bezüglich der Benennung von Prüfstellen zu klären, so wie das für andere Baumaterialparameter üblich ist.

4. Anforderungen an die Messverfahren (erforderliche Nachweisgrenzen, Grenz- und Richtwerte)

In den nachstehenden Tabellen werden die gesetzlichen Anforderungen an Messgrößen zusammengefasst. In der Tabelle 2 werden zunächst alle einschlägigen Vorschriften etc. aufgelistet. In allen nachfolgenden Tabellen werden als Nuklide nur die aufgeführt, deren Halbwertszeit größer als 100 Tage ist. In der Tabelle 3 sind die Zahlenwerte der in Tabelle 2

aufgelisteten Anforderungen aufgeführt. Leere Zellen bedeuten hierbei, dass in der genannten Literatur keine Anforderungen an diesen Parameter gestellt werden.

5. Messverfahren und Messgrößen

Die zur Bestimmung der geforderten Messgrößen einzusetzenden Verfahren richten sich nach den physikalischen Eigenschaften - besonders der Art des radioaktiven Zerfalls - der Radionuklide und deren evtl. vorhandenen kurzlebigen Tochternuklide. Einige Messgrößen können direkt oder nach einer einfachen physikalischen Anreicherung (z. B. Einengung von Flüssigkeiten) erfasst werden. Als spektrometrische Messverfahren dienen hierbei im Allgemeinen die hochauflösende Gammaspektrometrie, die Alphaspektrometrie mit Hilfe von Sperrschichtdetektoren oder eingeschränkt durch Flüssigszintillationsmessung mit α/β–Trennung. Gängig sind jedoch auch integrierende Zählverfahren mit α/β–Zählrohren, Lukaskammern oder Flüssigszintillationsmessungen mit und ohne α/β–Trennung. Zur Erreichung niedriger Nachweisgrenzen oder zum nuklidspezifischen Nachweis sind jedoch bei einer Reihe von Nukliden radiochemische Trennvorgänge und Anreicherungen der zählenden Messung vorzuschalten (z. B. eine extraktionschromatografische Trennung oder eine Fällung). Die Messverfahren sind hierbei nahezu die gleichen. Für langlebigere Nuklide oder für die Elemente Uran und Thorium kommen jedoch auch massen- oder elementspezifische Verfahren wie die Kinetische Phosphoreszenzanalyse, die ICP-Massenspektrometrie oder die Röntgenfluoreszenz in Frage. Zur Orientierung vor Ort und zur einfacheren Handhabung kommen darüber hinaus auch In-situ-Methoden zum Einsatz. Außer bei der hochauflösenden In-situ-Gammaspektrometrie und der γ-Ortsdosisleistungsmessung können hierbei jedoch lediglich vor Ort gemessene Gesamt-Alpha- oder -Beta-Zählraten über eine Anschlusskalibrierung in Aktivitäten von Nukliden in einem feststehenden Nuklidvektor umgerechnet werden.

Zur Optimierung der einzusetzenden Messmethoden werden vor allem in den Messanleitungen [3,5] oder in Normen dokumentierte Messverfahren diskutiert. Dies schließt jedoch nicht aus, dass von einem Labor eigene oder modifizierte Verfahren eingesetzt werden, solange die Richtigkeit und die Eignung des Verfahrens nachgewiesen werden können.

Ein Sonderfall ist die Bestimmung der Messgröße der sogenannten „Langlebigen Alphastrahler“ LLA. Diese Messgröße ist pragmatisch über eine Messanleitung definiert [5]. Hier wird als LLA die gemessene Gesamt-Alphaaktivität nach Abklingen der luftgetragenen kurzlebigen Radonzerfallsprodukte verstanden.

Die Tabelle 4 zeigt den Rahmen, welche Nuklide grundsätzlich mit welcher Methodik nachweisbar sind. Im Detail ist jedoch nicht jedes Nuklid gleich empfindlich nachweisbar. In der hochauflösenden Gammaspektrometrie ist z. B. die Nachweisgrenze für ^{230}Th oder ^{234}U um das Hundertfache höher als die Nachweisgrenze von ^{226}Ra (gemessen über die Folgeprodukte ^{214}Pb und ^{214}Bi). Ferner ist besonders bei der Gammaspektrometrie die Nachweisgrenze abhängig von den Probeneigenschaften. Große Aktivitäten (besonders an Nukliden mit hochenergetischer Gammastrahlung wie ^{40}K) verschlechtern durch die Erhöhung des Untergrundes durch Comptonstreuung die Nachweisgrenzen allgemein und besonders bei den Nukliden mit niederenergetischer Gammastrahlung (z.B. ^{210}Pb). Die Nachweisgrenzen dieser niederenergetisch nachweisbaren Nuklide sind darüber hinaus durch Absorptionseffekte beeinflusst von der Dichte und der Elementzusammensetzung der Probe. Zu Details der Gammaspektrometrie, Auswahl der Messsysteme und Einfluss der Messgeometrie sei auf die

Messanleitungen [5] verwiesen und zwar besonders auf die Teile „IV.4 γ-SPEKT-NATRAD“ und „D-γ-SPEKT-OWASS-01“.

Die relativen Verhältnisse der Nachweisgrenzen der natürlichen Radionuklide untereinander sind in erster Näherung von den eingesetzten Systemen unabhängig. Die Nachweisgrenze eines bestimmten Radionuklides ist abhängig von der Effizienz des verwendeten Detektors, der Qualität der Abschirmung, der Höhe des natürlichen Untergrundes am Aufstellort und der verwendeten Messgeometrie. Für die Darstellungen im Kapitel 6 wurde das folgende Messsystem zugrunde gelegt: koaxialer n-type-HPGe-Detektor mit 35 % relativer Effizienz in „Ultra-Low-Background“-Ausführung. Die Halbwertsbreite bei 1,33 MeV beträgt 1,9 keV, das Peak-zu-Compton–Verhältnis ca. 60, die integrale Zählrate zwischen 50 keV und 2000 keV ca. 1,7 ips. Bei einer Messzeit von 230000 s sind nur Wechselwirkungen des Detektionssystems mit der kosmischen Höhenstrahlung nachweisbar. Mit anderen Systemen sind grundsätzlich andere, auch niedrigere Nachweisgrenzen erreichbar. Die für die Darstellungen verwendete Messgeometrie ist im Kapitel 6 erläutert. In den dortigen Tabellen bei der Gammaspektrometrie angegebene Nachweisgrenzen beziehen sich immer auf das Radionuklid ^{226}Ra bestimmt über die kurzlebigen Radonzerfallsprodukte unter der Annahme des vollständigen Gleichgewichtes. Generell gilt, dass durch den Einsatz unterschiedlicher Messgeometrie die Nachweisgrenze beeinflusst wird und die verwendete Messgeometrie nicht in jedem Labor die optimale Geometrie darstellt. Bei einigen Radionukliden erfolgt die Bestimmung über kurzlebige Tochternuklide, die zur Bestimmung des zugehörigen Mutternuklids benutzt werden können und so zu geringeren Nachweisgrenzen in der Gammaspektrometrie führen. Hierbei erfordert die Bestimmung jedoch eine zusätzliche Wartezeit bis zum teilweisen oder vollständigen Aufbau des jeweiligen Tochternuklids. Je nach laborspezifischer Methodik und Nuklid sind hierfür Wartezeiten bis maximal ca. 120 d erforderlich (Zeit bis zum nahezu vollständigen Aufbau des ^{234}Th). Durch in verschiedenen Laboratorien praktizierte Methodenoptimierungen (z. B. Detektortyp, Messgeometrie, Probenvorbereitung, zeitversetzte Mehrfachmessungen, ...) sind Reduzierungen der erreichbaren Nachweisgrenzen im Einzelfall und je nach Nuklid um Faktoren zwischen ca. 3 - 30 und Verkürzungen der Wartezeiten bei Tochternuklidmessungen möglich. Soweit nicht anders vermerkt, ist in den folgenden Darstellungen und Tabellen bei der Berechnung der Nachweisgrenzen ein vollständiges Gleichgewicht zwischen Mutter und Töchtern unterstellt.

Grundsätzlich ist bei der Angabe von Erkennungs- und Nachweisgrenzen anzumerken, dass die in dieser Arbeit zitierten oder dargestellten Werte nach den Messanleitungen [5] berechnet wurden. Damit sind die dargestellten Erkennungsgrenzen ca. zweimal so groß und die Nachweisgrenzen ca. anderthalbmal so groß wie die nach DIN 25482 berechneten.

6. Optimierung der Methodenauswahl

Zur Optimierung der Auswahl des Messverfahrens muss eine Reihe von Gesichtspunkten berücksichtigt werden. Diese sind:

1. die geforderten Analysenparameter (z. B. Anzahl und Art der zu analysierenden Radionuklide),
2. die erreichbare Nachweisgrenze (im Vergleich zur geforderten Nachweisgrenze, falls es hierzu Forderungen des Gesetzgebers oder des Auftraggebers gibt),
3. der Zeitaufwand für die Messung und für die Gesamtanalyse (Zeitdauer zwischen Probeneingang und dem Vorliegen eines Prüfberichtes)

4. das verfügbare Probenmaterial (z. B. Probenmenge und -konsistenz).

Die (typische) Gesamtmessunsicherheit ist sicher ein weiteres mögliches Kriterium der Optimierung. Betrachtet man die Gesamtmessunsicherheit in Aktivitätsbereichen weit oberhalb der Nachweisgrenzen, werden bis auf Ausnahmen überwiegend relative Gesamtmessunsicherheiten von 10 bis 20 % berichtet. Die radiochemischen Verfahren werden hierbei z. B. in Ringversuchen der Leitstellen häufig mit größeren Gesamtmessunsicherheiten (im Sinne von Vergleichstandardabweichungen) bewertet als die rein instrumentellen Verfahren. Es ist hier aber jeweils der konkrete Einzelfall zu betrachten. Generell gilt natürlich für alle Verfahren: eine Reduzierung der Gesamtmessunsicherheit wird nur durch Erhöhung des Aufwandes erreicht (z. B. Einsatz von Ausbeutetracern). Von den Autoren wird daher empfohlen, die Gesamtmessunsicherheit zur Optimierung zwar heranzuziehen, aber es können hier keine allgemeinen Angaben gemacht werden.

Ein weiteres mögliches Kriterium der Optimierung ist selbstverständlich der finanzielle Aufwand (Investitions- und laufende Kosten). Hierzu können aber auch keine allgemeinen Angaben gemacht werden. Zum einen wird bei einer konkreten Ausschreibung der tatsächliche finanzielle Aufwand sichtbar und kann damit zur Optimierung direkt genutzt werden. Andererseits ist bei einer Neueinrichtung oder Umrüstung eines Labors zu bedenken, dass bereits vorhandene Messsysteme berücksichtigt werden müssen und dass der personelle Aufwand für eine Analyse auch stark vom zu erwartenden Probendurchsatz abhängen wird. Beide Aspekte beeinflussen eine Kostenkalkulation jedoch in so erheblichem Maße, dass eine Angabe eines durchschnittlichen Aufwandes an dieser Stelle auch keinen Nutzen bringt. Die Anschaffungskosten hängen natürlich auch sehr stark vom Markt ab, so dass sich die Autoren dazu entschlossen haben, hier keine Angaben zu machen. Wegen des im Allgemeinen höheren personellen Aufwandes sind radiochemische Methoden häufig, jedoch nicht zwingend teurer als rein instrumentelle Verfahren.

Grundsätzlich müssen einige Anmerkungen zur Probenahme gemacht werden: In der Regel bürgt das Labor für die Repräsentativität des Messergebnisses der Probe. Die Repräsentativität der Probe in Bezug auf das Untersuchungsobjekt liegt in der Verantwortung des jeweiligen Probenehmers. Hierzu kann der Einsatz integrierender Vor-Ort-Methoden hilfreich sein.

Für die Optimierung der Methodenauswahl kann kein allgemeingültiges Schema angegeben werden, da eine Reihe von Randbedingungen letztendlich im Labor entschieden wird. Daher sollen im Folgenden einige praktische Anwendungsfälle diskutiert werden. Hilfreich ist aber, in jedem Fall die Randbedingungen im Vorfeld zu präzisieren. Das heißt für den potenziellen Auftraggeber, dass er in einer Ausschreibung möglichst genaue Anforderungen an die Analytik stellt. Zu diesem Zweck wurde von den Autoren ein Musterausschreibungsformular entwickelt (Tabellen 5a und 5b). Dieses kann zugleich den Laboren als Checkliste für die Auftragsannahme dienen.

Generell ist bei der Auswahl der optimalen Messmethode zu beachten, dass die hochauflösende Gammaspektrometrie eine zentrale Rolle spielt, da sie gestattet, gleichzeitig sowohl alle γ-strahlenden Radionuklide als auch ihre langlebigen α- und β-strahlenden Mutternuklide zu bestimmen. Hinzu kommt, dass die Probenpräparation für die Gammaspektrometrie verhältnismäßig einfach, oft zerstörungsfrei ist und praktisch keine Präparationsverluste auftreten. Weitere Vorteile sind die in vielen Fällen schnelle Verfügbarkeit der Ergebnisse und die interne Qualitätssicherung durch Plausibilitätsbetrachtung der im Spektrum gemessenen Daten für verschiedene genetisch verknüpfte Nuklide. Auf Grund der Vorteile des Verfahrens sollte zunächst immer die Frage

gestellt werden: Ist die anstehende Analyseaufgabe mittels Gammaspektrometrie lösbar oder nicht?

Bei der Empfehlung von Messverfahren liegen in der Regel folgende Kriterien zugrunde:

1. Mit den aufgeführten Messverfahren kann die Bestimmung der Aktivitätsgehalte für ein oder mehrere Radionuklide bzw. Elemente in den zu untersuchenden Medien nahezu uneingeschränkt erfolgen.
2. Die in Vorschriften und Richtlinien geforderten Nachweisgrenzen werden mit den vorgeschlagenen Messverfahren in der Regel erreicht.
3. Im Allgemeinen werden Messverfahren vorgeschlagen, die sich in langjähriger Praxis der Überwachung der Umweltradioaktivität bewährt haben und mit den üblichen Ausrüstungen von Laboratorien für die Umgebungsüberwachung anwendbar sind.

Sind die Analyseaufgaben mittels Gammaspektrometrie lösbar, ist dieses Verfahren zu empfehlen. Stehen lediglich geringe Probenmengen zur Verfügung oder werden nicht nur Abschätzungen bezüglich zu überwachender Grenzwerte, als vielmehr Erhebungsmessungen von Umweltdaten vorgenommen, bei welchen auch geringe Aktivitätskonzentrationen (auch deutlich unterhalb geforderter Grenzwerte) erfasst werden sollen, rücken die radiochemischen Messverfahren in den Vordergrund.

6.1 Luft (Schwebstaub)

Neben den Radon-Isotopen, die hier nicht näher betrachtet werden, spielt der Schwebstaub als Quelle luftgetragener Radioaktivität eine zu beachtende Rolle, wobei die langlebigen Alphastrahler die dosisrelevante Größe darstellen. In der Tabelle 6.1 sind die üblicherweise verwendeten Methoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide im Schwebstaub angegeben. Zunächst wird die Gesamtalphaaktivität (GAA) von staubbelegten Filtern mittels Zählung der α-Teilchen oder direkter Alphaspektrometrie von Staubfiltern bestimmt. Bei höheren Aktivitäten (z. B. auch für Maskenfilter) wird die Gammaspektrometrie zur Bestimmung der Aktivitäten der einzelnen Nuklide eingesetzt. Nur in seltenen Fällen sind aufwendige radiochemische Präparationen zur Bestimmung relevanter radioaktiver Komponenten notwendig.

6.2 Wasser

Wasser ist ein in nahezu allen Messaufgaben vorkommendes Medium. Bedeutsam bei der Analyse auf natürliche Radionuklide ist hierbei, dass man weder von einem säkularen Gleichgewicht in den Zerfallsreihen noch von einem Gleichgewicht der kurzlebigen Töchter mit den langlebigen Müttern ausgehen kann. Diese Besonderheiten sind gerade bei der gammaspektrometrischen Messung und der Interpretation der resultierenden Spektren zu berücksichtigen.

Steht ein ausreichendes Wasserprobenvolumen zur Verfügung ist häufig die Gammaspektrometrie auch hier die Methode der Wahl (Tabelle 6.2). Zu beachten ist jedoch, dass es speziell beim Einengen stark mineralisierter Wässer zu Niederschlägen kommen kann, die bei der Auswahl der Messgeometrie und bei der Betrachtung von Messunsicherheiten geeignet berücksichtigt werden müssen.

Radiochemische Verfahren haben vor allem bei geringen zur Verfügung stehenden Wassermengen und bei Erhebungsmessungen Vorteile.

Abbildung 2 stellt grafisch verschiedene gesetzliche Anforderungen, geforderte Nachweisgrenzen und erreichbare Nachweisgrenzen dar. Die Nachweisgrenzen der Gammaspektrometrie legen das in Kapitel 5 geschilderte Messsystem zugrunde. Gewählt wurde eine Messzeit von 70000 s, eine Ausgangsmenge von 10 Liter und eine Messung in der Einliter-Ringbecher-Geometrie.

6.3 Böden, Sedimente, Rückstände, technische Medien

Bei der Bewertung der genannten Materialien ist den radioaktiven Ungleichgewichten erhöhte Aufmerksamkeit zu widmen. Je nach Zeitdauer zwischen den verschiedenen Trennvorgängen und der Analyse im Labor sind verschiedene Ungleichgewichte zu berücksichtigen. Aus der Vielzahl der Prozesse, welche zu radioaktiven Ungleichgewichten führen, sollen im folgenden typische Beispiele skizziert werden und die Auswahl für die Problemstellung adäquater Analysenverfahren begründet werden. Tabelle 6.3 fasst hierbei die möglichen Messverfahren zusammen.

Rückstände aus der Förderung von Erdgas, Erdöl und Thermalwasser

Die geochemischen Verhältnisse in den Lagerstätten führen in der Regel zur Lösung der Radium-Nuklide ^{226}Ra, ^{228}Ra, ^{223}Ra und ^{224}Ra im geförderten Medium. Bei den Stoffströmen von einigen 100 m³/h reichen bereits geringe Abscheidungsraten aus, um an Rohrleitungen Beläge mit spezifischen Aktivitäten von einigen 10 Bq/g abzulagern. Während ^{223}Ra und ^{224}Ra durch die kurzen Halbwertzeiten von einigen Tagen in der Regel nicht nachgewiesen werden können, bilden ^{226}Ra und ^{228}Ra die Hauptbestandteile der genannten Beläge. Das ebenfalls nachweisbare ^{228}Th wird nicht transportiert, es bildet sich aus dem ^{228}Ra nach. Außerdem enthalten die Beläge ^{210}Pb, welches aus dem im Medium gelösten ^{222}Rn gebildet wird.

Zur Untersuchung derartiger Rückstände ist die Gammaspektrometrie optimal geeignet, wenn Kenntnisse zu den zu erwartenden Ungleichgewichten Berücksichtigung finden.

Einsatz Uranhaltiger Farben in der Porzellanindustrie

Uranverbindungen werden nach wie vor als Farbstoffe in der Porzellanindustrie eingesetzt. Uranverbindungen sind dadurch gekennzeichnet, dass sie ^{238}U im Gleichgewicht mit ^{234}U sowie im natürlichen Isotopenverhältnis zu ^{235}U enthalten. Alle weiteren Nuklide der Zerfallsketten sind nicht vorhanden. Gleiches gilt für die Nuklide aus der Thorium-Zerfallsreihe.

Beim Umgang mit diesen Materialien ist häufig die Frage zu beantworten, ob das Uran natürlichen Ursprungs ist. Zur Bestimmung des Isotopenverhältnisses ^{238}U/^{235}U (Angabe der natürlichen Isotopenzusammensetzung) ist die ICP-MS geeignet, weil die Isotopenverhältnisse mit Genauigkeiten von 1 bis 0,1% bestimmbar sind.

Die Frage ob entsprechend StrlSchV U-238+ oder U-238sec vorliegt, kann durch Einsatz der Gammaspektrometrie beantwortet werden.

Einsatz von Th-Verbindungen für Schweißelektroden und Glühstrümpfe

Thorium-Verbindungen finden bei der Herstellung von Schweißelektroden Verwendung. Ferner existieren Altlasten, die aus der Herstellung von Glühstrümpfen herrühren. Die Materialien enthalten die Nuklide ^{230}Th, ^{232}Th und ^{228}Th. Da bei Thorium-Altlasten in der Regel ein Zeitraum von einigen Jahren zwischen Herstellung der Th-Verbindung und der Untersuchung vergangen ist, kann man von einem Gleichgewicht zwischen ^{232}Th, ^{228}Ra und ^{228}Th ausgehen.

Für Routineuntersuchungen an Altlasten ist in der Regel die Gammaspektrometrie ausreichend, da sowohl ^{228}Ra als auch ^{228}Th gut nachgewiesen werden können. Dennoch ist häufig ein experimenteller Nachweis der Thorium(-232)-Konzentration erforderlich. Hierzu wird in der Regel die ICP-MS eingesetzt. Die Alphaspektrometrie kann nach radiochemischer Trennung diese Aufgabe ebenfalls erfüllen. Sie liefert darüber hinaus Werte für ^{230}Th und ^{228}Th.

Filterstäube aus der Stahlerzeugung

Die Prozesstemperaturen bei der Stahlherstellung führen dazu, dass sich im Filterstaub sowohl ^{210}Pb als auch ^{210}Po in Konzentrationen von 10 – 100 Bq/g ansammeln. Dabei ist das ^{210}Po im Überschuss, d. h. es wird nicht durch das langlebige Mutternuklid ^{210}Pb unterstützt. Die separate Analyse von ^{210}Po ist notwendig, da sich hieraus eine eventuelle Lagerzeit für zu beseitigende Rückstände bis zum Abklingen unterhalb eines Wertes von z. B. 50 Bq/g ableiten lässt. Die Lösung dieser Aufgabenstellung erfordert eine Gammaspektrometrie zur Bestimmung von ^{210}Pb und eine radiochemische Trennung mit anschließender Alphaspektrometrie zur Bestimmung von ^{210}Po. Häufig kann jedoch die Kombination einer Betamessung des ^{210}Bi zur Bestimmung des ^{210}Pb mit einer ^{210}Po-Alphaspektrometrie die kostengünstigere Methode sein.

6.4 Biomedien

Die Bestimmung von Radionukliden in Biomedien (Pflanzen, Fisch, Fleisch, Milch) ist eine sehr anspruchsvolle Aufgabe. Aufgrund der hohen Dosisrelevanz von ingestierten Lebensmitteln und der extrem geringen natürlichen Untergrundwerte in Biomedien sind oft nur sehr geringe Radionuklidaktivitäten nachzuweisen.

Im Allgemeinen ist, wie bei anderen Medien auch, die Gammaspektrometrie die universell einsetzbare Nachweismethode. Bei den in der Tabelle 6.4 dargestellten Verhältnissen ist zu berücksichtigen, dass sich bei der Gammaspektrometrie die praktisch erzielbaren Nachweisgrenzen zwischen den prinzipiell bestimmbaren Radionukliden sehr stark unterscheiden. Die in der Tabelle 6.4 aufgeführte Nachweisgrenze für die gammaspektrometrische Bestimmung von Ra-226 ist eine beispielhafte Angabe für ein in vielen Radioaktivitätslaboren vorhandenes Messsystem (n-Type-Detektor ca. 35 % relative Effektivität, Messgeometrie: 1l -Ringbecher, Messzeit: ca. 24 h, Einwaage: frisch).

Grundsätzlich sind Messmethoden mit radiochemischer Probenvorbereitung eher in der Lage, Messwerte im Bereich der natürlichen Hintergrundwerte zu erzielen. Dieser Vorteil bedeutet jedoch einen deutlich höheren Analysenaufwand als bei der Gammaspektrometrie und führt damit oft zu wesentlich höheren Analysenkosten. In vielen Fällen, in denen die benötigten Aussagen (z. B. Dosisbeitrag aus einzelnen Biomedien) nicht zwingend Messempfindlichkeiten auf Untergrundniveau erfordern, ist die Anwendung der Gammaspektrometrie sinnvoll und angezeigt.

6.5 Integrierende Vor-Ort-Methoden

Die in diesem Kapitel beschriebenen Verfahren sind Feldmethoden. Es muss darauf hingewiesen werden, dass diese Verfahren nur als relative Verfahren hinsichtlich der Bestimmung von natürlichen Radionukliden anzusehen sind. Das heißt. ein Einsatz dieser Messmethoden zur Ermittlung des Anteils einzelner Radionuklide ist nur im Zusammenhang mit einer Qualitätssicherung durch nuklidspezifische Verfahren möglich. Sehr häufig ist dies die hochauflösende Gammaspektrometrie.

In diesem Kapitel werden keine Aussagen zur Optimierung von Methoden getroffen, sondern anhand dreier Beispiele in Tabelle 6.5 lediglich relevante Einsatzfälle skizziert.

Generell gelten für die Vor-Ort-Methoden folgende Aussagen:

1. Der technische Aufwand ist in der Regel gering. Es wird ein tragbares Messgerät zzgl. Hilfsmittel wie Kalibrier-/Kontrollstrahler benötigt. Eine Ergänzung durch GPS-Gerät zur Koordinatenerfassung ist sinnvoll.
2. An Personal ist mindestens eine im Umgang mit der Messtechnik und in der Auswertung der Ergebnisse erfahrene Person erforderlich.
3. Die Kosten sind im Allgemeinen niedrig.
4. Messwerte liegen unmittelbar nach der Messung vor.

Für die Messung der Ortsdosisleistung ist in den meisten Fällen eine an das Problem angepasste Kalibrierung empfehlenswert (z. B. für natürliche Radionuklide auf den WISMUT-Kalibrierflächen in Reust).

Bei der Messung der Oberflächenkontamination wird aufgrund von Absorptionsprozessen nur die Betastrahlung der unmittelbar obersten Schicht (bei Schrottoberflächen: ca. 0,1 mm, bei Volumenproben: ca. 1 mm) gemessen: durch schichtenweises Abtragen (Kratzproben, Kleinschürfe o. ä.) muss sichergestellt werden, dass die zu bestimmende Kontamination nicht überdeckt bzw. dass sie über einen bestimmten Bereich homogen verteilt (und damit repräsentativ für das zu untersuchende Gebiet) ist. Alternativ dazu ist auch eine Probenahme möglich, wobei die Probe im Feld bzw. im Labor in einem flachen Behältnis durch Auflegen des Oberflächenkontaminationsmonitors gemessen werden kann.

Literatur

[1] Stolz, Werner: Radioaktivität - Grundlagen Messung Anwendung, Teubner Verlagsges. Leipzig, 1990 (Natürliche Radionuklide: S. 52ff)

[2] Lindner, Helmut: Grundriss der Atom- und Kernphysik, Fachbuchverlag Leipzig, 1988

[3] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung bergbaulicher Tätigkeiten (REI Bergbau), unveröffentlichte Richtlinie des BMU; Verfahren zur Bestimmung von natürlichen Radionukliden in der Umwelt zur Erfüllung der REI Bergbau, Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin 1999

[4] Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität; Empfehlung der Strahlenschutzkommission; verabschiedet in der 155. Sitzung SSK am 2./3. Juli 1998

[5] Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen an kerntechnischen Anlagen, Loseblattsammlung (1. bis 6. Lieferung), Urban & Fischer Verlag, München Jena, 2000.

[6] Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie: Anordnung der Durchführung von Programmen zur Überwachung der Umweltradioaktivität in den Sanierungsbetrieben der Wismut GmbH auf dem Territorium des Freistaates Sachsen. Az.: 44-4686.30/4 vom 23.09.1996

[7] Aufsichtliche Anordnungen der thüringischen Behörden zum Basisprogramm der Wismut GmbH an deren Sanierungsstandorten

[8] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen vom 20.07.2001; BGBl I 2001; S. 1714; zuletzt geändert BGBl I 2002; S. 1869

[9] Richtlinie für die Überwachung der Strahlenexposition bei Arbeiten nach Teil 3 Kapitel 2 Strahlenschutzverordnung vom 15. Dezember 2003; GMBl. 2004; S. 418

[10] Verordnung zur Novellierung der Trinkwasserverordnung vom 21. Mai 2001; BGBl. I 2001; S. 959

[11] Empfehlung der Kommission vom 20. Dezember 2001 über den Schutz der Öffentlichkeit vor der Exposition gegenüber Radon im Trinkwasser; ABl. EG 2001; L 344; S. 45

[12] Verordnung über natürliches Mineralwasser, Quellwasser und Tafelwasser vom 1. August 1984; BGBl. I 1984; S. 1036; zuletzt geändert BGBl. I 2006; S. 2762

[13] Entwurf der Entscheidung der Kommission vom [...] zur Änderung der Anhänge II und III der Richtlinie 98/83/EG des Rates vom 3. November 1998 über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch; bisher unveröffentlicht; Stand Herbst 2003

[14] Radiation Protection 112 - Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials - 1999 - Directorate-General Environment Nuclear Safety and Civil Protection; http://europa.eu.int/comm/energy/nuclear/radioprotection/publication/doc/112_en.pdf

[15] Prüfwerte für die Beurteilung der Grundwassergefährdung durch radioaktive Bodenkontaminationen; R. Gellermann, U. Haberlau, M. Hahn, J. Beetz; "altlasten-spektrum" Erfassung - Bewertung - Sanierung Herausgegeben vom Ingenieurtechnischen Verband Altlasten (ITVA); Heft 06/2002

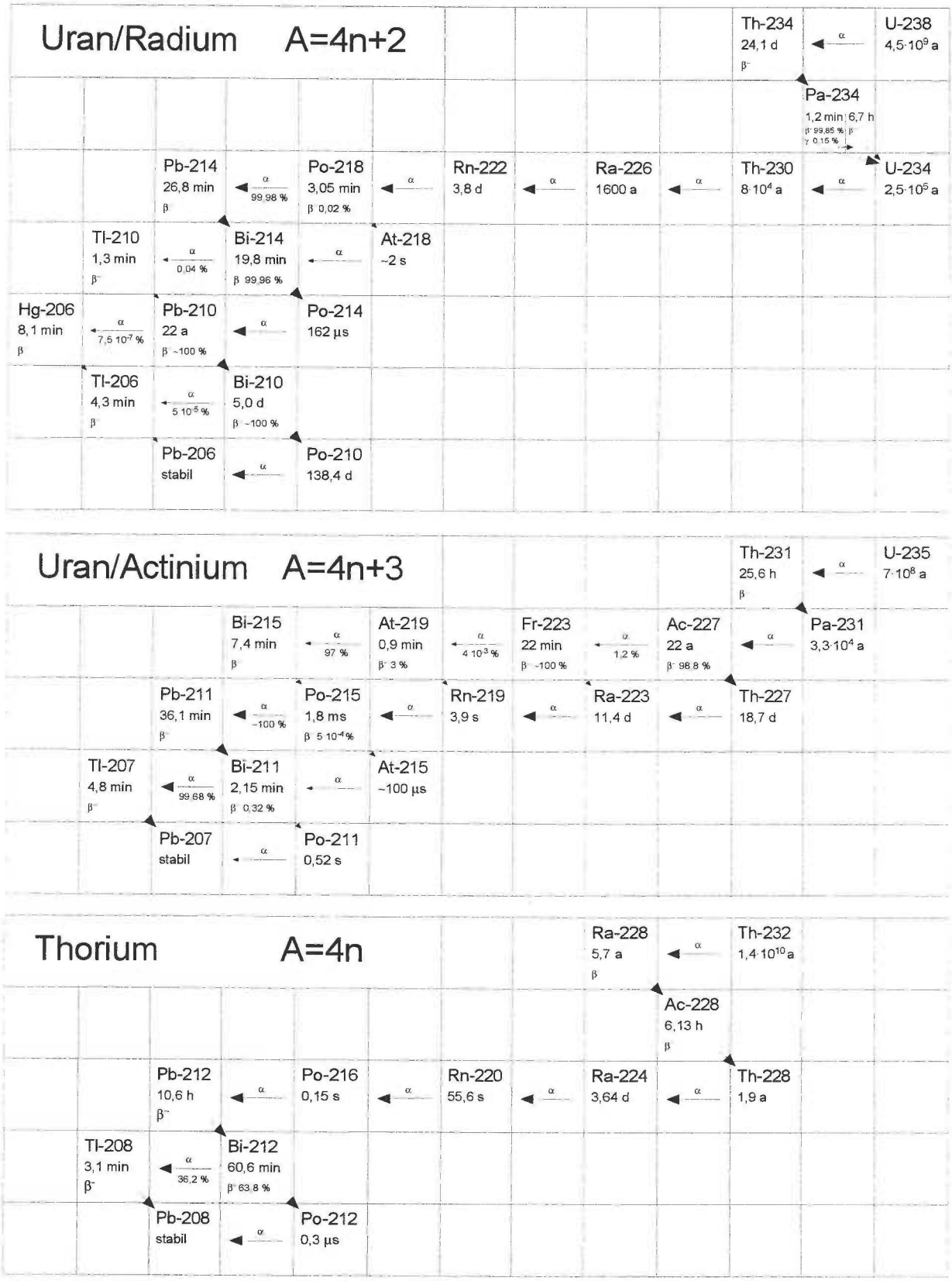

Abbildung 1: Natürliche Zerfallsreihen nach [5]

Tabelle 1: Messaufgaben zur Bestimmung natürlicher Radionuklide

	Umweltmedien				Rückstände und technische Medien	
Aufgaben	**Luft** [1]	**Wasser**	**Boden** [3]	**Biomedi-en**	**Rück-stände** [5]	**Techn. Medien** [4]
Überwachung berg-baulicher Tätigkei-ten (REI-Bergbau)	X [2]	X	X	X	X	
Abschätzung der Strahlenexposition bei Arbeiten (Anlage XI Teil B StrlSchV)	X				X	X
Bewertung von Rückständen (Teil A Anlage XII StrlSchV)	X	X	X	X	X	
Bewertung von Trink- und Mineral-wässern		X				
Umweltbewertungen (z.B. Altlasten und Hinterlassen-schaften)	X	X	X	X	X	
Bewertung von Bau-stoffen (radiation protection 112)						X

[1] Die Überwachung von Radon an Arbeitsplätzen oder in Wohnungen wird ausdrücklich ausgenommen. Damit beinhaltet das Umweltmedium besonders den Schweb- und Se-dimentationsstaub.

[2] „X" bedeutet, dass dieses Medium bzw. dieser Rückstand bei der jeweiligen Aufgabe eine Rolle spielen kann, aber nicht in jedem Fall beachtet werden muss.

[3] Sedimente sind messtechnisch vergleichbar mit Böden zu behandeln.

[4] z. B. thorierte Schweißelektroden oder Gasglühstrümpfe.

[5] Bei der Bewertung der Rückstände können Eluate von Bedeutung sein, diese sind wie Wasser zu behandeln.

Tabelle 2: Randbedingungen und gesetzliche Grundlagen für Messaufgaben

Aufgaben	**Quelle**	**Art der Anforderung**	**Anforderung an die effektive Dosis**	**Bemerkung**
Überwachung bergbaulicher Tätigkeiten	REI-Bergbau	Erforderliche Nachweisgrenzen	-	
	Berechnungsgrundlagen-Bergbau	Hintergrundwerte	-	
Überwachung von Arbeiten (Anlage XI Teil B StrlSchV)	Richtlinie zur Überwachung von Arbeiten	Ausgangsdaten für die Dosisberechnung	6 mSv/a	
Bewertung von Rückständen (z. B. Teil A Anlage XII StrlSchV)	StrlSchV Anl. XII	Überwachungsgrenzen	1 mSv/a	
Bewertung von Trink- und Mineralwässern	Trinkwasserverordnung	Parameterindikatorwert	0,1 mSv/a	Gesamtrichtdosis !
	Änderungsentwurf EU-RiLi Trinkwasser	Prüfwerte, Referenzaktivitätskonzentrationen, Nachweisgrenzen		Stand Herbst 2003; Überführung in nationales Recht ?
	Radon im Trinkwasser (EU-Empfehlung)	Referenzkonzentrationen	0,1 mSv/a	Überführung in nationales Recht ?
	Mineral- und Tafelwasserverordnung	Aktivitätskonzentrationen		zur Angabe „Geeignet für die Zubereitung von Säuglingsnahrung“
Umweltbewertungen (z. B. Altlasten und Hinterlassenschaften) [1]	Berechnungsgrundlagen-Bergbau	Hintergrundwerte	-	
Bewertung von Baustoffen	(radiation protection 112)	Index der Aktivitätskonzentration	0,3 – 1 mSv/a	Erhöhung der Gammaexposition

[1] SSK-Empfehlungen zur Sanierung der Hinterlassenschaften des Uranbergbaus werden nicht mehr angewandt. Sie haben jedoch den Verlauf der Sanierung entscheidend geprägt. Zur Zeit wird an einer Altlastenrechtlichen Regelung gearbeitet. Der bisherige Entwurf orientiert sich am BBodSchG und an der BBodSchV. Hierbei sollen dort erstmals auch radioaktive Prüfwerte analog den Prüfwerten in der BBodSchV genannt werden. Ein verlässlicher Bezug kann also hier von den Autoren nicht genannt werden. Eine mögliche Form der Umsetzung wird jedoch in [15] geschildert. Die dortige Vorgehensweise kam bereits im Land Brandenburg zur Anwendung.

Tabelle 3: Anforderungen an die Messtechnik

	Einheit		U	Th	LLA	Ges. α	Ges. β	γ-ODL	U-238	U-234	Th-230	Ra-226	Pb-210	Po-210	Th-232	Ra-228	Th-228	U-235	Pa-231	Ac-227	H-3	K-40
Überwachung bergbaulicher Tätigkeiten																						
REI-Bergbau (erforderliche Nachweisgrenzen)																						
Abwetter [1]	mBq/m³	(µg/m³)	10		1				120													
Schwebstaub (Immission)	mBq/m³	(µg/m³)	0,01		0,1				0,12			0,1	0,1									
Niederschlag	Bq/m²30d	(mg/m² 30d)	0,01						0,12			0,1	0,1									
ODL	nSv/h							50														
Abwasser	Bq/l	(mg/l)	0,01						0,12			0,05	0,05			0,05						
Oberflächenwasser etc.	Bq/l	(mg/l)	0,001						0,01			0,01	0,02			0,05						
Boden, Sediment [2]	Bq/g								0,02			0,02	0,02			0,02						
Biomedien [3]	Bq/kg											0,05	0,05									
Berechnungsgrundlagen (Hintergrundwerte)																						
Luft [4]	mBq/m³								0,01	0,01	0,01	0,01	0,31	0,04	0,008	0,008	0,008	5E-04	5E-04	5E-04		
ODL	nSv/h							120														
Wasser [4]	Bq/l								0,02	0,02	0,002	0,02	0,005	0,002	0,001	0,02	0,001	0,001	0,001	0,001		
Boden [2]	Bq/g								0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,04	0,04	0,04	0,002	0,002	0,002		
Biomedien	Bq/kg								0,05	0,05	0,02	0,1	0,06	0,06	0,02	0,1	0,02	0,002	0,002	0,002		
Überwachung von Arbeiten (Anlage XI Teil B StrlSchV)																						
RiLi Arbeiten (Anlage 3 mit Tabelle 4) (Abgeleiteter Konzentrationswert)																						
Luft	mBq/m³				26																	
Bewertung von Rückständen (z. B. Teil A Anlage XII StrlSchV)																						
StrlSchV Anl. XII (Überwachungsgrenzen)																						
Boden	Bq/g								0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2					
Rückstände	Bq/g								0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2					
Trink- und Mineralwasser																						
Trinkwasserverordnung (Parameterwerte)																						
Trinkwasser	Bq/l																				100	
Änderungsentwurf EU-RiLi Trinkwasser (Prüfwerte, Referenzaktivitätskonzentration, Nachweisgrenze)																						
Trinkwasser	Bq/l					0,1	1															
Trinkwasser	Bq/l								3	2,8		0,5				0,2						
Trinkwasser	Bq/l					0,04	0,4		0,005	0,005		0,04				0,08					10	
Radon im Trinkwasser (EU-Empfehlung) (Referenzkonzentrationen)																						
Trinkwasser	Bq/l												0,2	0,1								
Mineral- und Tafelwasserverordnung (Anlage 4: Voraussetzungen für die Verwendung des Zusatzes "Geeignet für die Zubereitung von Säuglingsnahrung")																						
Mineral- und Tafelwasser	Bq/l	(mg/l)	0,002									0,125				0,02						
Umweltbewertungen (z.B. Altlasten und Hinterlassenschaften) Verweis auf Hintergrundwerte																						
Bewertung von Baustoffen (radiation protection 112) (Index der Aktivitätskonzentration)																						
Baustoffe	Bq/g											0,15			0,1							1,5

[1] Urankonzentrationen nur für Aufbereitungsanlagen
[2] Bezug auf Trockenmasse
[3] Bezug auf Feuchtmasse
[4] Werte überwiegend oder teilweise rechnerisch ermittelt
[5] Berechnung aus c = E / (1,2 e T) mit E = 0,01 mSv/a, T = 2000 h, e = 1,6E-5 Sv/Bq (Thorium)

Tabelle 4: Einsetzbare Messverfahren für die geforderten Nuklide und Messgrößen

Nuklide bzw. Messgrößen	Art der Strahlung (inkl. kurzlebiger Töchter)			Direktmessung oder Messung nach physikalischer Anreicherung			Messung nach chemischer Anreicherung			Element- oder massenspezifische Methoden	In-situ-Methoden
	Alphastrahler	Betastrahler	Gammastrahler	Gammaspektrometrie	Alphaspektrometrie	Gesamt α/β-Messung	Gammaspektrometrie	Alphaspektrometrie	Gesamt α/β-Messung		
Uran										X	
Thorium										X	
LLA					(x)	X					
Gesamt – Alpha					(x)	X					(x)
Gesamt – Beta						X					(x)
γ-ODL											X
U-238	X	X	X	X				X		X	X
U-234	X		X	X				X		X	
Th-230	X		X	X				X		(x)	
Ra-226	X	X	X	X	X		X	X	X		X
Pb-210		X	X	X			X		X		X
Po-210	X							X	(x)		
Th-232	X							X		X	
Ra-228		X	X	X			X		X		X
Th-228	X	X	X	X				X		(x)	X
U-235	X	X	X	X				X		(x)	X
Pa-231	X		X	X							
Ac-227		X	X	X					X		

Tabelle 5a:

Analytik für natürliche Radionuklide (Spezifikation)

Angaben zum Auftraggeber

Anschrift:

Tel.: Ansprechpartner:

Fax:

E-Mail: Leiter:

Angaben zum Probenauftrag

Medium	Anzahl	Probenmenge *)
Boden		
Sediment		
Biomedien		
Wasser		
Luft (Filter)		
Rückstände		
Technische Medien		
Sonstiges		

*) Angaben in kg, g, Liter, Stück, m^3, m^2

Charakterisierung der Probe und Beschreibung des Zustandes:

Probennahme durch **(Zutreffendes ankreuzen)**

Auftraggeber ☐ Auftragnehmer ☐ unabhängiges Labor *) ☐

*) Anschrift erforderlich

Rücknahme der Probe **(Zutreffendes ankreuzen)**

ja ☐ nein ☐

Aufbewahrungsfrist: _____

Tabelle 5b:

Geforderte Radionuklide oder Messgrößen und Messmethoden:

(Zutreffendes ankreuzen)

	Radionuklid / Messgröße	**Messmethode** (soweit nicht im Ermessen des Auftragnehmers)
	Uran/Radium-Zerfallsreihe	
	Uran-238	
	Uran-234	
	Thorium-230	
	Radium-226	
	Blei-210	
	Polonium-210	
	Thorium-Zerfallsreihe	
	Thorium-232	
	Radium-228	
	Thorium-228	
	Actinium-Zerfallsreihe	
	Uran-235	
	Protactinium-231	
	Actinium-227	
	Sonstige Messgrößen	
	Gesamt-Alpha	
	Gesamt-Beta	
	Langlebige Alphastrahler	
	Uran	
	Thorium	
	Trockenrückstand	

Beschreibung:

Medium	**Maßeinheit *)**	**Nachweisgrenze** (sofern Forderungen bekannt)	**Gesamtmessunsicherheit **)** (sofern Forderungen bekannt)
Boden			
Sediment			
Biomedien			
Wasser			
Luft (Filter)			
Rückstände			
Technische Medien			
Sonstiges			

*) Bq, Bq/kg FM, Bq/kg TM, Bq/g FM, Bq/g TM, Bq/l, Bq/Stück, Bq/m³, Bq/m², Bq/(m² 30d) (Elementkonzentration in mg, µg oder ng)

**) 95 % Vertrauensniveau

Ergebnisübergabe: (Zutreffendes ankreuzen)

Form: Bewertung ☐ Prüfbericht ☐ sonstiges: _____

Frist nach Bereitstellung der Proben oder Termin: _____

Datum Unterschrift

Tabelle 6.1: Methoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide in der Luft (Schwebstaub)

Parameter	Aufgaben nach Tabelle 1 Zeile Nr.						Methode	Verfahren	Geometrie	t_{mess}	g^*	$t_{analyse}$
	1	2	3	4	5	6				[h]	[Bq]	[d]
Gesamtalpha-Aktivität (GAA)	x	x	-	-	x	-	Direkte Alpha-Spektrometrie oder Alphazählung	Belegung von Staubfiltern mit Staub-sammlern	Staubfilter von max. 5 cm Durch-messer	24	0,002	2 - 25
^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{228}Ra, ^{228}Th, ^{40}K	x	x	-	-	x	-	γ-Spektrometrie	Direktmessung der Staubfilter	Filter-geometrie	24	0,05	2 - 25
^{238}U, ^{234}U, ^{235}U, ^{226}Ra	(x)	-	-	-	-	-	α-Spektrometrie nach radio-chemischer Trennung (klassisch)	Aufschluss, radio-chemische Trennungen	Stahl-Plätt-chen	24	0,002	3
^{210}Pb	(x)	-	-	-	-	-	β-Messung nach Spontanab-scheidung		Ni-Plättchen	24	0,004	3
^{210}Po	(x)	-	-	-	-	-	α-Spektrometrie nach Spontan-abscheidung		Ni-Plättchen	24	0,004	3
^{226}Ra	(x)	-	-	-	-	-	α-Messung, Emanometrie oder LSC nach radiochemischer Trennung			2 - 24	0,001	25

Legende:

t_{mess}	typische Messzeit
g^*	Nachweisgrenze nach Messanleitungen [5]
$t_{analyse}$	typischer Zeitraum für eine Analyse
LSC	Flüssigszintillationsmessungen
	Schwerpunkt
-	nicht notwendig
(x)	nur bedingt

Tabelle 6.2: Methoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide in Wässern

Parameter	Aufgaben nach Tabelle 1 Zeile Nr.						Methode	V	Verfahren	Geometrie	t_{mess}	g^*	$t_{analyse}$
	1	2	3	4	5	6		[l]			[h]	[mBq/l]	[d]
^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{227}Ac, ^{231}Pa, ^{228}Ra, ^{228}Th, ^{40}K	x	-	-	x	x	-	γ-Spektrometrie	10	Einengen oder bis zur Trocknen eindampfen	Ringbecher, verschiedene Dosen	24		2 - 25
^{226}Ra, ^{228}Ra	x	-	-	x	x	-	γ-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung	10	Einengen, ggf. Aufschluss, radiochemische Trennungen		24		2 - 25
										Stahl-Plättchen	24	1	2 - 4
^{238}U, ^{234}U, ^{235}U	x	-	-	x	x	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung (klassisch)	1		Stahl-Plättchen	24	10	2 - 4
	x	-	-	x	x	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung (Extraktionschromatographie)	0,2					
^{238}U, (U)	x	-	-	x	x	-	ICP-MS	0,01	direkt	-	0,5	0,0005/10/ 0,005	< 1
	x	-	-	x	x	-	ICP-MS	0,01					
^{232}Th, (Th)	(x)	-	-	(x)	(x)	-	ICP-MS	0,01		-	0,5	0,001	< 1
U	x	-	-	x	x	-	KPA	0,001		-	0,5	0,0005	< 1
										Küvette	0,5	0,08	<1
^{230}Th, ^{227}Th, ^{228Th}	(x)	-	-	(x)	(x)	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung (klassisch)	1	Einengen, ggf. Aufschluss, radiochemische Trennungen	Stahl-Plättchen	24	2	2 - 4
										Stahl-Plättchen	24	10	2 - 4
	(x)	-	-	(x)	(x)	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung (Extraktionschromatographie)	0,2		Ni-Plättchen	24	4	3
										Ni-Plättchen	24	4	3
											24	5	3 - 5
^{210}Pb	x	-	-	x	x	-	β-Messung nach Spontanabscheidung	1			2 - 24	1	
^{210}Po	x	-	-	x	x	-	α-Spektrometrie nach Spontanabscheidung	1					
^{228}Ra, ^{227}Ac	x	-	-	x	x	-	β-Messung nach radiochemischer Trennung	2,5					
^{226}Ra	x	-	-	x	x	-	α-Messung, Emanometrie oder LSC nach radiochemischer Trennung	1					25

Legende:

t_{mess}	typische Messzeit
g^*	Nachweisgrenze nach Messanleitungen [5]
$t_{analyse}$	typischer Zeitraum für eine Analyse
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
KPA	Kinetische Phosphoreszenzanalyse
LSC	Flüssigszintillationsmessungen
-	nicht notwendig
(x)	nur bedingt

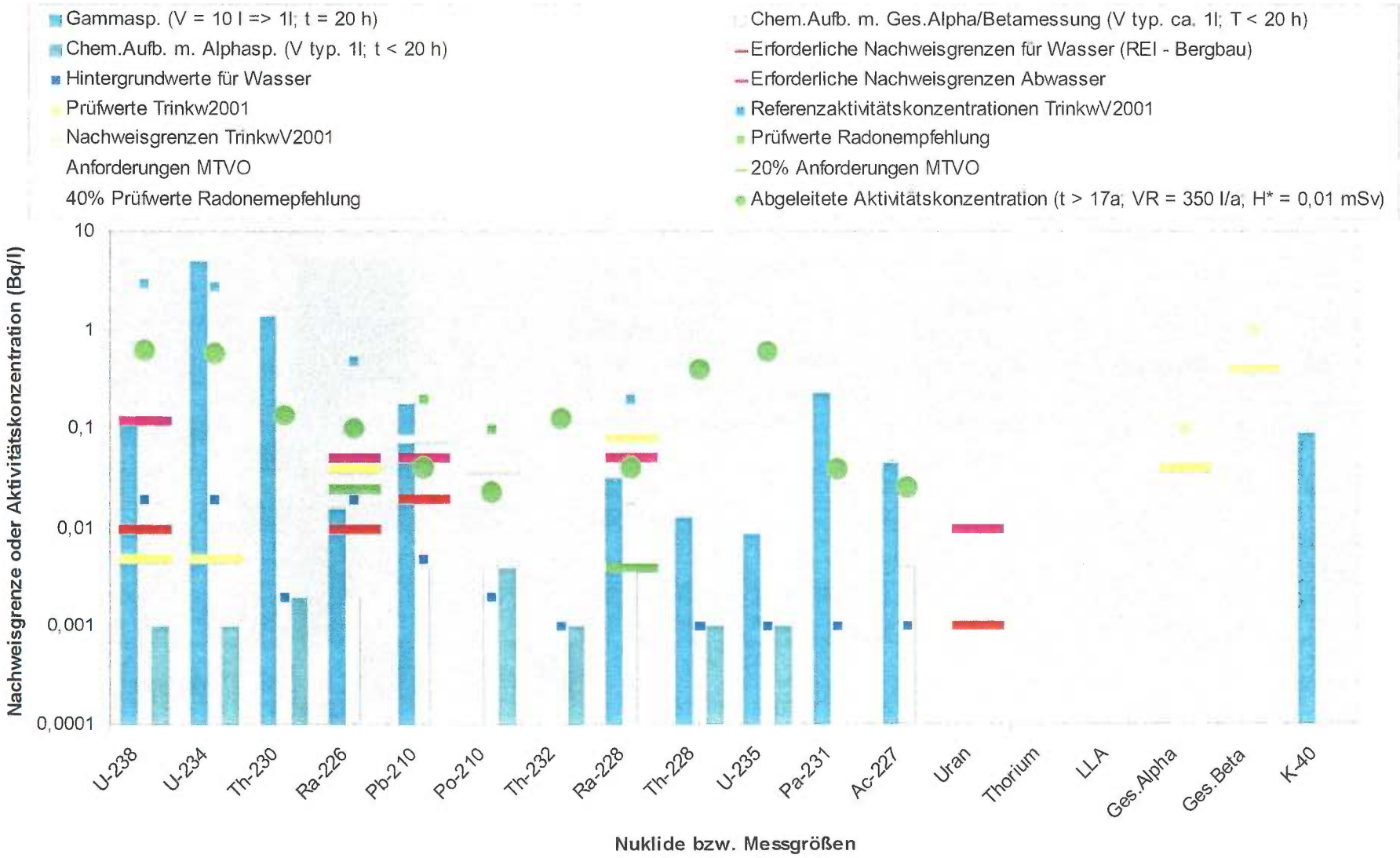

Abbildung 2: Anforderungen an zu prüfende Werte und einzuhaltende Nachweisgrenzen sowie erreichbare Nachweisgrenzen

Tabelle 6.3: Methoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide in Feststoffen (Böden, Rückstände, technische Materialien)

Parameter	Aufgaben nach Tabelle 1 Zeile Nr.						Methode	m	Verfahren	Geometrie	t_{mess}	g^*	$t_{analyse}$
	1	2	3	4	5	6		[g]			[h]	[Bq/kg]	[d]
^{238}U, ^{230}Th, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{235}U, ^{227}Ac, ^{231}Pa, ^{228}Ra, ^{228}Th, ^{40}K	x	x	-	-	x	-	γ-Spektrometrie	1 - 1000	Trocknen, Zerkleinern	Ringbecher, verschiedene Dosen	5		1
											1		1
^{238}U, ^{226}Ra, ^{210}Pb, ^{228}Ra, ^{228}Th	x	x	x	-	x	x							
^{238}U, ^{234}U, ^{235}U	(x)	x	x	-	x	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung	3		Stahl-Plättchen	8	1	5
	(x)	x	x	-	x	-	ICP-MS	3	Trocknen, Zerkleinern, Veraschen, Aufschluss, radiochemische Trennungen	-	0,5	0,0005/ 10/0,005	3
^{238}U, (U)	x	x	x	-	x	-	ICP-MS	3		-	0,5	0,001	3
^{232}Th, (Th)	-	x	x	-	x	-	ICP-MS	3		-	0,5	0,0005	3
U	x	x	x	-	x	-	KPA	3			0,5	0,001	3
^{230}Th, ^{227}Th, ^{228}Th, ^{227}Ac	(x)	x	x	-	x	-	α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung	3		Plättchen	8	1	5
										Ni-Plättchen	4	10	3
^{210}Pb	x	x	x	-	x	-	β-Messung nach Spontanabscheidung	3		Ni-Plättchen	4	10	3
^{210}Po	-	x	x	-	x	-	α-Spektrometrie nach Spontanabscheidung	3					

Legende:

m	typische Probenmasse
t_{mess}	typische Messzeit
g^*	Nachweisgrenze nach Messanleitungen [5]
$t_{analyse}$	typischer Zeitraum für eine Analyse
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
KPA	Kinetische Phosphoreszenzanalyse
	Schwerpunkt
-	nicht notwendig
(x)	nur bedingt

Tabelle 6.4: Methoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide in Feststoffen (Biomedien)

Parameter	Aufgaben nach Tabelle 1 Zeile Nr.						Methode	m	Verfahren	Geometrie	t_{mess}	g^*	$t_{analyse}$
	1	2	3	4	5	6		[g]			[h]	[Bq/kg FM]	[d]
^{235}U, ^{210}Pb, ^{226}Ra, ^{231}Pa, ^{230}Th, ^{232}Th, ^{234}U, ^{238}U, ^{228}Th, ^{227}Ac, ^{228}Ra	-		x		x		γ-Spektrometrie	1000	Trocknen, Zerkleinern, ggf. Veraschen	Ringbecher, versch. Dosen, Schälchen, Röhrchen	24	0,3	21
^{226}Ra	x		x		x		α-Messung, Emanometrie oder LSC nach radiochemischer Trennung	100	Trocknen, Veraschen, Druckaufschluss, radiochemische Trennung	Vials	2	0,05	20
											0,5	0,1	4
										Ni-Plättchen	22	0,3	5
U	-		-		x		KPA	100					
^{210}Pb	x		x		x		β-Messung nach Spontanabscheidung	100					
^{210}Pb, ^{210}Po	-		x		x		α-Messung oder α-Spektrometrie nach Spontanabscheidung	30	Trocknen, Veraschen, Nassaufschluss, radiochemische Trennung	Ni-Plättchen	22	0,1	4
^{238}U, ^{234}U, ^{235}U	-		x		x		α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung	3	Trocknen, Zerkleinern, Veraschen, Aufschluss, radiochemische Trennungen	Filter	48	0,001	4
										-	0,5	0,0005/ 10/0,005	3
	-		x		x		ICP-MS	3					
^{238}U, (U)	-		x		x		ICP-MS	3					
^{232}Th, (Th)	-		x		x		ICP-MS	3		-	0,5	0,001	3
^{230}Th, ^{227}Th, ^{228}Th, ^{227}Ac	-		x		x		α-Spektrometrie nach radiochemischer Trennung	500		-	0,5	0,0005	3
										Filter	72	0,001	5

Legende:

m	typische Probenmasse
t_{mess}	typische Messzeit
g^*	Nachweisgrenze nach Messanleitungen [5]
$t_{analyse}$	typischer Zeitraum für eine Analyse
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
LSC	Flüssigszintillationsmessungen
KPA	Kinetische Phosphoreszenzanalyse
	Schwerpunkt
-	nicht notwendig
(x)	nur bedingt

Tabelle 6.5: In-situ-Messverfahren

Verfahren	**Messung der Äquivalentdosis(leistung)**	**Messung der Oberflächenkontamination bzw. der spezifischen Aktivität oberflächennaher Radionuklide anhand der β-Strahlung**	**Messung der Gammadosisleistung in einem Bohrloch (z.B. im Zusammenhang mit einer Rammkernsondierung)**
Messgröße	Photonen-Äquivalentdosisleistung bzw. Umgebungs-Äquivalentdosisleistung in nSv/h (integrierende Messung der Photonenstrahlung [Röntgen- und Gammastrahlung, 20/70 keV ... 1,3/7 MeV])	Oberflächenkontamination in Bq/cm² bzw. spezifische Aktivität in Bq/kg (i. e. S.: integrierende Messung der Betastrahlung und Berechnung der Oberflächenkontamination bzw. spezifischen Aktivität auf der Basis einer problem-angepassten Kalibrierung)	spezifische Aktivität in Bq/kg (integrierende bzw. quasispektrometrische Messung der Photonenstrahlung [Röntgen- und Gammastrahlung, 20 keV ... 3 MeV])
erreichbare Nachweisgrenzen für die einzelnen Radionuklide	keine Nuklidanalytik i. e. S.; Nachweisgrenze für die Äquivalentdosisleistung: 5 nSv/h (geräteabhängig)	übliche Nachweisgrenze für die Nettozählrate der Betastrahlung liegt bei 2 s^{-1} (für eine Nulleffektzählrate von 5 s^{-1} bei Nulleffekt- bzw. Bruttoeffektmesszeiten von 30 s) → NWG für die spezifische ^{226}Ra-Aktivität liegt bei ca. 0,15 Bq/g für radioaktives Gleichgewicht in U-Ra-Reihe	geschätzte Nachweisgrenze für die spezifische ^{226}Ra-Aktivität liegt unter 0,2 Bq/g (detektor- und messzeitabhängig) für radioaktives Gleichgewicht in U-Ra-Reihe
Messunsicherheit	15 ... 30 %	20 ... 30 %	20 ... 30 %
Qualität der Ergebnisse im Zusammenhang mit der Zuverlässigkeit des Verfahrens und des Einflusses möglicher Störgrößen	bei bekannter horizontaler und vertikaler Verteilung der Materialien mit höherer spezifischer Aktivität und bekanntem Nuklidvektor: gute Qualität und hohe Zuverlässigkeit; bei nicht bekannter Verteilung (Überdeckung von Materialien mit höherer spezifischer Aktivität durch Stoffe mit geringerer spezifischer Aktivität) und unbekanntem Nuklidvektor: Fehlinterpretation der Ergebnisse möglich (z. B. bei erhöhtem Kaliumgehalt bzw. höherer spezifischer Aktivität von Radionukliden der Thorium-Reihe im Vergleich zum natürlichen Hintergrundwert)	bei bekannter horizontaler und vertikaler Verteilung der Materialien mit höherer spezifischer Aktivität und bekanntem Nuklidvektor: gute Qualität und hohe Zuverlässigkeit; bei nicht bekannter Verteilung (Überdeckung von Materialien mit höherer spezifischer Aktivität durch Stoffe mit geringerer spezifischer Aktivität) und unbekanntem Nuklidvektor: mögliche Fehlinterpretation der Ergebnisse	abhängig von der Homogenität des untersuchten Bodens hinsichtlich der Verteilung der natürlichen Radionuklide, (quasi)spektrometrische Auswertung bei Nichtgleichgewicht ist nicht trivial; Störgrößen: ^{40}K und Radionuklide der Thorium-Reihe
Einsatzspektrum hinsichtlich der Radionuklide unter Beachtung von möglichen Nuklidkorrelationen	bei allen gammastrahlenden Radionukliden; mögliche Korrelationen zur spezifischen Aktivität durch radioaktives Gleichgewicht in den natürlichen Zerfallsreihen	bei allen betastrahlenden Radionukliden; Korrelation zwischen Nettozählrate und spezifischer Aktivität der gesuchten Radionuklide unter bestimmten Randbedingungen herstellbar; dazu ist Anschlusskalibrierung für den speziellen Anwendungsfall erforderlich	bei allen gammastrahlenden Radionukliden; Korrelation zwischen Zählrate und spezifischer Aktivität der gesuchten Radionuklide unter bestimmten Randbedingungen herstellbar; dazu ist Anschlusskalibrierung für den speziellen Anwendungsfall erforderlich