



Abschlussbericht zum Untersuchungsvorhaben

Innere Strahlenexposition beim berufsbedingten Umgang mit thoriumhaltigen Materialien

von

**Thomas Sternad
Dr. Ulrich Kratzel
Dr. Herbert Hellmann**

**Bayerisches Landesamt für Umweltschutz
Außenstelle Nordbayern
Schloss Steinenhausen
Messstelle für Radiotoxikologie**

95326 Kulmbach





| | |
|--|----|
| 1 ZUSAMMENFASSUNG | 3 |
| 2 EINLEITUNG | 7 |
| 3 DAS ELEMENT THORIUM | 9 |
| 3.1 ALLGEMEINES | 9 |
| 3.2 NATÜRLICHES VORKOMMEN | 9 |
| 3.3 ZERFALLSDATEN | 10 |
| 3.4 VERWENDUNG | 12 |
| 3.4.1 VORKOMMEN UND GEWINNUNG | 13 |
| 3.4.2 INDUSTRIELLE ANWENDUNG | 13 |
| 3.4.3 BEISPIELE INDUSTRIELLER ANWENDUNGEN | 14 |
| 4 NATÜRLICHES THORIUM IN STUHL UND URIN..... | 15 |
| 4.1 GRUNDSÄTZLICHES | 15 |
| 4.2 LITERATURDATEN NATÜRLICHER THORIUMAUSSCHIEDUNG | 16 |
| 4.3 NATÜRLICHES ISOTOPENVERHÄLTNIS DES THORIUM | 18 |
| 4.4 DATEN NATÜRLICHER THORIUMAUSSCHIEDUNG VON DER MESSSTELLE DES LFU | 18 |
| 4.5 KONSEQUENZ FÜR DIE BEWERTUNG VON MESSWERTEN | 21 |
| 5 EINGESETZTE MESSTECHNIK..... | 23 |
| 5.1 AUSSCHIEDUNGSANALYSEN..... | 23 |
| 5.1.1 ALPHASPEKTROMETRIE | 23 |
| 5.1.2 AUSWERTUNG DER SPEKTREN | 23 |
| 5.2 MATERIALPROBEN..... | 25 |
| 5.2.1 GAMMASPEKTROMETRIE..... | 25 |
| 5.3 UMGEBUNGSMESSUNGEN | 26 |
| 5.3.1 DOSISLEISTUNGSMESSUNG..... | 26 |
| 6 MODELLE ZUR AUSSCHIEDUNGSANALYTIK..... | 27 |
| 6.1 ALLGEMEINES | 27 |
| 6.2 ICRP 23 | 27 |
| 6.3 ICRP 30 | 28 |
| 6.4 ICRP 54 | 29 |
| 6.5 METABOLISCHE DATEN FÜR THORIUM..... | 29 |
| 7 PROBENAUFBEREITUNG DER URIN- UND STUHLPROBEN..... | 34 |
| 8 DAS WIG-SCHWEIßVERFAHREN..... | 37 |
| 8.1 ALLGEMEINES | 37 |
| 8.2 BESCHREIBUNG DES WIG-SCHWEIßVERFAHRENS..... | 37 |
| 8.3 THORIERTE WOLFRAMELEKTRODEN | 38 |
| 8.4 EINSATZFELDER DES WIG-SCHWEIßENS | 40 |
| 8.5 STRAHLENEXPOSITION BEIM WIG-SCHWEIßEN | 40 |
| 8.6 UNTERSUCHTE PERSONENGRUPPE | 41 |
| 8.6.1 AUSWAHL MÖGLICHER TEILNEHMER | 41 |
| 8.6.2 AUSWAHL DER PROBANDEN | 42 |
| 8.7 ORGANISATION DES PROBENVERSANDES..... | 42 |
| 8.8 ARBEITSUMFELD DER PROBANDEN | 43 |
| 8.9 EINSCHÄTZUNG DER STRAHLENEXPOSITION | 48 |
| 8.10. URINANALYSEN | 49 |
| 8.10.1 MESSERGEBNISSE | 49 |
| 8.10.2 VERGLEICH MIT KONTROLLGRUPPE..... | 50 |
| 8.10.3 INTERPRETATION DER MESSWERTE | 51 |
| 8.10.4 AKTIVITÄTSZUFUHR UND EFFEKTIVDOSIS..... | 52 |
| 8.11 VERGLEICH MIT LITERATURDATEN..... | 54 |
| 8.11.1 RAUMLUFTUNTERSUCHUNGEN | 54 |
| 8.11.2 DIREKTE AUSSCHIEDUNGSUNTERSUCHUNGEN | 56 |
| 8.12 AUSSCHIEDUNGSUNTERSUCHUNG UND RAUMLUFTUNTERSUCHUNG EINES SCHWEIßERS | 56 |
| 8.13 STUHLPROBEN AUSGEWÄHLTER WIG-SCHWEIßER | 57 |
| 8.13.1 ARBEITSBEDINGUNGEN | 57 |
| 8.13.2 MESSERGEBNISSE | 59 |
| 8.14 DISKUSSION VORLIEGENDER DATEN | 60 |
| 9 UNTERSUCHUNGEN ZUR STRAHLENEXPOSITION IN EINEM BETRIEB DER FEUERFESTINDUSTRIE | 61 |
| 9.1. ALLGEMEINES | 61 |
| 9.2 UNTERSUCHTER BETRIEB | 61 |



| | |
|---|-----|
| 9.3 VERARBEITETE ROHMATERIALIEN | 62 |
| 9.3.1 EIGENSCHAFTEN FÜR DIE FEUERFESTINDUSTRIE | 62 |
| 9.3.2 RADIOAKTIVITÄT DER EINGESETZTEN ZIRKONVERBINDUNGEN | 63 |
| 9.4 FERTIGUNG | 64 |
| 9.5 MÖGLICHKEITEN DER STRAHLENEXPOSITION | 65 |
| 9.6 PROBANDEN..... | 66 |
| 9.7 ERGEBNISSE DER URINANALYSEN | 67 |
| 9.8 DISKUSSION | 67 |
| 10 UNTERSUCHUNGEN ZUR STRAHLENEXPOSITION IN EINEM GIEßEREIBETRIEB | 69 |
| 10.1 ANLASS DER UNTERSUCHUNG | 69 |
| 10.2 ALLGEMEINES | 69 |
| 10.3 VERWENDUNG VON SCHLICHTEN | 69 |
| 10.4 ORTSBEGEHUNG UND MESSUNGEN | 70 |
| 10.4.1 SCHLICHTE-TRANSPORTBEHÄLTER..... | 70 |
| 10.4.2 GIEßEREI | 71 |
| 10.5 MESSUNGEN AN DER MESSSTELLE FÜR RADIOTOXIKOLOGIE | 74 |
| 10.5.1 WISCHTESTPROBEN..... | 74 |
| 10.5.2 MATERIALPROBEN..... | 75 |
| 10.5.3 AUSSCHIEDUNGSPROBEN | 77 |
| 10.6 BEWERTUNG DER MESSERGEBNISSE..... | 78 |
| 11 UNTERSUCHUNGEN ZUR STRAHLENEXPOSITION IN EINEM BETRIEB DER LAMPENTECHNOLOGIE..... | 79 |
| 11.1 EINSATZ VON THORIUM IN DER LAMPENTECHNOLOGIE..... | 79 |
| 11.1.1 GRUNDSÄTZLICHES | 79 |
| 11.1.2 VERWENDUNG VON THORIUM IN DER LAMPENTECHNOLOGIE | 79 |
| 11.1.3 EINSATZFELDER DER GASENTLADUNGSLAMPEN..... | 80 |
| 11.1.4 RELEVANZ FÜR DEN STRAHLENSCHUTZ | 80 |
| 11.2 HERSTELLUNGSPROZESS IM UNTERSUCHTEN BETRIEB | 81 |
| 11.3 MESSKAMPAGNE | 84 |
| 11.3.1 GRUNDSÄTZLICHES | 84 |
| 11.3.2 TEILNEHMENDE INSTITUTIONEN UND EINGESETZTE MESSVERFAHREN..... | 85 |
| 11.3.3 ZIEL DER MESSUNGEN | 85 |
| 11.4 MESSUMGEBUNG..... | 86 |
| 11.4.1 VORAUSSETZUNGEN | 86 |
| 11.4.2 UMGANGSORTE | 86 |
| 11.4.3 PROBANDEN..... | 87 |
| 11.4.4 PROBENAHMEN | 87 |
| 11.5 ERGEBNISSE..... | 88 |
| 11.5.1 ZUVERLÄSSIGKEIT DER PROBANDEN..... | 88 |
| 11.5.2 NUKLIDVERHÄLTNISS DER THORIUMVERBINDUNGEN..... | 89 |
| 11.5.3 ERGEBNISSE DER STUHLANALYSEN..... | 90 |
| 11.6 BEWERTUNG DER MESSERGEBNISSE..... | 92 |
| 11.6.1 NATÜRLICHER THORIUMANTEIL IN DER STUHLPROBE | 92 |
| 11.6.2 VERGLEICH DER MESSWERTE MIT NATÜRLICHER AUSSCHIEDUNG..... | 93 |
| 11.6.3 ABSOLUTWERTE UND NUKLIDVEKTOR..... | 93 |
| 11.6.4 VERFAHREN NACH SCHUPFNER | 98 |
| 11.6.5 ZUSAMMENFASSUNG | 99 |
| 11.7 DISKUSSION DER ERGEBNISSE | 99 |
| 12 LITERATUR..... | 102 |



1 Zusammenfassung

“Beim Umgang mit thoriumoxidhaltigen Wolframelektroden (Herstellung, Lagerung, Schweißen, Schleifen, Transport, Entsorgung) müssen die Anforderungen der StrlSchV berücksichtigt werden”.

Mit dieser Feststellung schließt ein Informationsblatt des Fachausschusses “Eisen und Metall”, Sachgebiet “Schadstoffe und Schweißtechnik” vom 08.07.1996 (BG 96). Die Stellungnahme ist das Ergebnis eines umfangreichen Messprogramms zur Einschätzung der quantitativen Strahlenexposition beim WIG-Schweißen (BG 97).

WIG-Schweißer (Wolfram-Inertgas-Schweißer) werden den beruflich nicht strahlenexponierten Personen zugeordnet, für die der Grenzwert der Aktivitätszufuhr für die Inhalation von natürlichem Thoriumoxiden um den Faktor 60 auf 5 Bq/a herabgesetzt wurde (StrlSchV 89). Der Grenzwert der Jahresdosis beträgt für nicht beruflich exponierte Personen 5 mSv/a (StrlSchV 89). In Untersuchungen verschiedener Autoren wurden diese Werte erreicht oder sogar überschritten. Eine weitere Senkung der Grenzwerte ist aufgrund der bevorstehenden Umsetzungen der europäischen Grundnormen im Strahlenschutz zu erwarten.

Dies war der Anlass für Untersuchungen des TÜV Bayern-Sachsen e.V., die im Auftrag des Bayerischen Staatsministeriums für Landesentwicklung und Umweltfragen durchgeführt wurden (Rei 93). Im Rahmen dieses Vorhabens wurden bei Atemluftmessungen am Arbeitsplatz Expositionen bis zu 19 mSv/a ermittelt. Untersuchungen der Atem- und Raumluft sind jedoch nur Momentaufnahmen definierter Verhältnisse am Arbeitsplatz und geben nur unzureichend die langjährige und individuelle Exposition des Schweißers wieder. Daher sollten die bisherigen Ergebnisse durch Ausscheidungsanalysen ausgewählter WIG-Schweißer überprüft werden.

Im Rahmen des Vorhabens wurden 30 Tagesurinproben und fünf Tagesstuhlproben von 30 WIG-Schweißern aus Nordbayern untersucht. Bei den ausgewählten Personen handelte es sich um langjährig beschäftigte Schweißer, die häufig Umgang mit thorierten Elektroden hatten und deren Bedingungen am Arbeitsplatz eine hohe individuelle Exposition durch Thorium möglich erscheinen ließen.



Die ermittelten Aktivitätszufuhren aus den Urinalysen liegen im Bereich zwischen 1,7 und 37,8 Bq Th_{nat.}/a; die dazugehörigen Werte der Effektivdosen zwischen 0,7 und 7,6 mSv/a. Bei zwei der fünf Stuhlproben wurde eine beruflich bedingte Thoriumzufuhr nachgewiesen.

Wichtig für die Beurteilung der Messergebnisse ist die Kenntnis der natürlich bedingten Thoriumausscheidung über Urin und Stuhl. Im Rahmen der Untersuchung wurden Urinproben von 17 nicht exponierten Personen aus Oberfranken analysiert und als Kontrollgruppe den Ergebnissen der WIG-Schweißer gegenübergestellt. Messwerte für natürliche Thoriumausscheidung, die als Nebenprodukt der Ausscheidungsmessungen gemäß §63 der Strahlenschutzverordnung anfallen, wurden ebenso zum Vergleich herangezogen, wie vorhandene Daten aus der Literatur.

Bei Urinproben wurde eine erhöhte Thoriumausscheidung gegenüber der natürlichen Ausscheidung nachgewiesen. Die Ausscheidungsraten der WIG-Schweißer sind im Mittel gegenüber den Werten der Kontrollgruppe erhöht.

Man muss somit von der Bildung von Körperdepots beim langjährigen WIG-Schweißen mit thorierten Wolframelektroden ausgehen. Nach den durchgeführten Untersuchungen können Körperdosen im Bereich zwischen 5 und 10 mSv/a erreicht werden. Eine Überschreitung der Grenzwerte für nicht strahlenexponierte Personen ist somit nicht auszuschließen. Nicht erreicht wurden die Effektivdosiswerte, die sich aus den Atemluftuntersuchungen des TÜV Bayern-Sachsen e.V. ergeben. Dies ist möglicherweise auf Ungenauigkeiten der gültigen biokinetischen Modelle zurückzuführen. Die Größenordnung der ermittelten Aktivitätszufuhren und Effektivdosiswerte liegt im Bereich der Ergebnisse anderer Autoren, die eine berufsbedingt erhöhte Thoriumausscheidung bzw. -aufnahme bei WIG-Schweißern nachgewiesen haben.

Auf der Grundlage vorliegender Ergebnisse sollten Arbeitsschutzmaßnahmen beim WIG-Schweißen mit thorierten Elektroden getroffen werden. So empfiehlt die Norddeutsche Metall-Berufsgenossenschaft soweit möglich auf die Verwendung thorierte Wolframelektroden zu verzichten und umfangreiche Maßnahmen zum Schutz der Beschäftigten am Arbeitsplatz zu treffen. Die Norddeutsche Metall-Berufsgenossenschaft hat inzwischen Ablaufpläne zur Minderung von Schweißrauch und Schleifstaub erarbeitet und diese in der Zeitschrift "Sicherheitsbeauftragter" vorgestellt (Sibe 99).



Thoriumhaltige Substanzen werden aufgrund ihrer herausragenden physikalischen Eigenschaften auch in anderen Bereichen der Industrie und Technik eingesetzt. In Gießereien werden thoriumhaltige Zirkonsande als Formsand und als Zusatz in angemischten Bindemitteln (Schlichte) eingesetzt. In der Feuerfestindustrie dienen thoriumhaltige Zirkonsande als Ausgangsstoff für hitzebeständige Materialien, die insbesondere in der Stahlindustrie Verwendung finden. In diesen Industriezweigen kann es beim Umgang und bei der Verarbeitung der thoriumhaltigen Substanzen zur externen und inneren Strahlenexposition kommen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Untersuchungen zur Strahlenexposition in einem Betrieb der Feuerfestindustrie, einem Gießerei und in einem der Lampentechnologie durchgeführt.

Im untersuchten Betrieb der Feuerfestindustrie wurden bei einem Vor-Ort-Termin die Arbeitsplätze besichtigt, an denen die Inkorporation von thorium- und uranhaltigen Stäuben und Aerosolen möglich ist. Nach Absprache mit der Fertigungsleitung wurden fünf Mitarbeiter aus dem Arbeitsbereich der Bearbeitung und Aufbereitung der Zirkonsande ausgewählt, die langjährigen und intensiven Umgang mit Zirkonsanden hatten und zur Abgabe von Urinproben veranlaßt.

Bei diesen Urinproben wurden keine Hinweise auf erhöhte Ausscheidungswerte gefunden. Die Ausscheidungsraten für Thorium und Uran liegen im Bereich der natürlichen Ausscheidung über den Urin. Begleitend zu den Ausscheidungsanalysen wurden Materialproben der verarbeiteten Rohstoffe und der Produkte gammaspektrometrisch vermessen.

Im untersuchten Gießereibetrieb wurden nach Absprache mit der Unternehmensleitung aus der Fertigung zwei Arbeiter ausgewählt, die zur Abgabe Urin- und Stuhlprobe bereit waren. Der in diesem Betrieb übliche Einsatz von Schlichte zur Fertigung von Gussteilen wurde einer strahlenschutztechnischen Prüfung unterzogen.

Die externe Strahlenexposition an den Arbeitsstätten liegt im Bereich der natürlichen Umgebungsstrahlung von ca. 0,1 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$. Die der Ausscheidungsanalysen ergaben keinerlei Hinweise auf eine beruflich bedingte Zufuhr von Uran- und Thoriumnukliden. Das Inkorporationsrisiko an den Arbeitsstätten wird als gering eingeschätzt. Strahlenschutzmaßnahmen sind nicht veranlasst.

Das Untersuchungsvorhaben wurde durch die Teilnahme des LfU an einer umfangreichen Messkampagne in einem Betrieb der Lampentechnologie abgeschlossen.



In der Lampenfertigung wird Thorium zur Verbesserung der elektrischen Eigenschaften der Wolframelektroden eingesetzt. Während einer Arbeitswoche waren sechs Mitarbeiter des Unternehmens damit beschäftigt, Wolframpulver mit Thoriumnitrat zu versetzen, um die gewünschte Dotierung des Wolframs zu erhalten (Dopkampagne). Diese Arbeiter wurden vor, während und nach der Dopkampagne von Vertretern verschiedener Institutionen aus dem Bereich Strahlenschutz unter Anwendung verschiedener Messtechniken überwacht. Ziel der Messkampagne war es, grundsätzliche Aussagen über die innere Strahlenexposition der Beschäftigten treffen zu können, die Vergleichbarkeit der angewandten Messverfahren zu überprüfen und die Messergebnisse mit den Erwartungen auf Grundlage der gültigen biokinetischen Modellen zu vergleichen. Eine enge Zusammenarbeit der Teilnehmer war hierzu Voraussetzung.

Das LfU war gemeinsam mit dem BfS für die Organisation der für die Ausscheidungsanalysen erforderlichen Urin- und Stuhlproben, sowie die Untersuchung der Stuhlproben zuständig. Von den sechs Beschäftigten wurden je eine Tagesstuhlprobe vor der Dopkampagne, fünf Tagesstuhlproben während der Dopkampagne und drei Tagesstuhlproben im unmittelbaren Anschluss an die Dopkampagne untersucht (54 analysierte 24h-Stuhlproben).

Über die individuellen Verläufe der Thorium-Ausscheidungsraten und über die Absolutwerte der Tagessausscheidung konnten Aussagen über erfolgte Inkorporationen getroffen werden. Bei allen sechs Arbeitern wurden Inkorporationen von Thorium während der Dopkampagne nachgewiesen. Bei 27 der 54 Stuhlproben wurde der angenommene Maximalwert der natürlichen Th 232-Ausscheidung überschritten. Der Vergleich mit parallel durchgeführten Exhalationsmessungen und Urinanalysen läßt auf überwiegende Zufuhr über Ingestion schließen. Die Einzelergebnisse der anderen Teilnehmer an der Messkampagne werden in dieser Arbeit nicht aufgeführt, da eine gemeinsame Veröffentlichung der Ergebnisse geplant ist.



2 Einleitung

In der bevorstehenden Novellierung der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) soll die Strahlenexposition durch natürliche radioaktive Stoffe stärker berücksichtigt werden.

Dies war der Anlass eines Untersuchungsvorhabens des TÜV Bayern-Sachsen e.V. im Auftrag des Bayerischen Staatsministeriums für Landesentwicklung und Umweltfragen. Im Rahmen dieses Vorhabens wurden bei Atemluftmessungen am Arbeitsplatz bei WIG-Schweißern (Wolfram-Inerter-Gasschweißer) Expositionen bis zu 19 mSv/a ermittelt (Rei 93).

Dieses Ergebnis war Anlass für die vorliegende Untersuchung an der Messstelle für Radiotoxikologie (MfR) des Bayerischen Landesamtes für Umweltschutz (LfU), Außenstelle Nordbayern.

Die gesetzlichen Vorgaben des europäischen und deutschen Strahlenschutzrechts stellen hohe Anforderungen an die Überwachung beruflich strahlenexponierter Personen. Neue Grenzwerte machen es nötig, den Blick auf Personengruppen zu richten, die bisher unzureichend unter dem Grundsatz der Minimierung jeglicher Strahlenexposition am Arbeitsplatz berücksichtigt wurden. So wurde der Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr für beruflich nicht exponierte Personen für die Inhalation von natürlichem Th_{nat} von 300 Bq/a auf 5 Bq/a gesenkt (Fassung der StrlSchV vom 18.05.1989 – StrlSchV 89). WIG-Schweißer werden den beruflich nicht strahlenexponierten Personen zugeordnet.

Doch auch an anderen Arbeitsstätten, an denen Umgang mit thorierten bzw. thoriumhaltigen Werkstoffen oder Produkten stattfindet, können die neuen Grenzwerte für Thorium überschritten werden.

Trotz der neu aufgekommenen Aktualität liegen schon einige Untersuchungen solcher Arbeitsstätten vor. Fast allen Untersuchungen gemeinsam ist die Messmethodik der Raum- und Atemluftuntersuchung. Diese stellen jedoch nur Momentaufnahmen definierter Verhältnisse am Arbeitsplatz dar und geben nur unzureichend die langjährige, individuelle Exposition wieder.

Zur Untersuchung langjährig exponierter Personen bieten sich Ausscheidungsuntersuchungen als indirektes, spezifisches Verfahren an. So sind Ausscheidungsanalysen des 24h-Urin oder des 24h-Stuhl anerkannte Messmethoden zur Ermittlung der Körperdosis (StrlSchV, §63 Absatz 6). Anhand von Urinproben können Körperdepots von Thorium nachgewiesen werden. Stuhlproben ermöglichen den Nachweis kurz zurückliegender Inkorporationen.



Im Rahmen der vorliegenden Untersuchung wurden Ausscheidungsproben von Personen untersucht, die an ihren Arbeitsplätzen langjährigen oder zeitlich begrenzten Umgang mit thori- umhaltigen Materialien hatten und noch haben. Dabei werden die individuellen Expositions- bedingungen an den Arbeitsstätten betrachtet und bei der Auswahl der Probanden sowie bei der Berechnung von Aktivitätszufuhr und Effektivdosis berücksichtigt. Grundlage der rechnerischen Aktivitäts- und Dosisermittlungen sind die gültigen gesetzlichen Normen. Vergleiche mit Untersuchungen anderer Institutionen sollen die Einordnung der Ergebnisse ~~Die Schwer-~~ **Die Schwer-** punkt der Arbeit liegt im Bereich der Untersuchungen von WIG-Schweißern und von Arbeitern in einem Betrieb der Lampenherstellung. Daneben wurden Messungen an Ar- beitsstätten und von Mitarbeitern eines Betriebes der Feuerfestindustrie und einer Giesserei durchgeführt.

3 Das Element Thorium

3.1 Allgemeines

Thorium ist ein natürlich vorkommendes Element, das Bestandteil der Lithosphäre der Erdkruste, des Eruptivgesteins und des Sedimentgesteins ist. Seinen Namen erhielt es von Berzelius, der es 1828 in einem norwegischen Mineral entdeckte und nach dem Donnergott Thor benannte. Die radioaktiven Eigenschaften des Thoriums wurden 1898 durch M. Curie und C. Schmidt entdeckt.

3.2 Natürliches Vorkommen

Von den bekannten Thoriumisotopen sind Th 227, Th 228, Th 230, Th 231, Th 232 und Th 234 natürlichen Ursprungs. Thorium kommt in der Umwelt vorwiegend in der Oxidationsstufe +4 in Verbindungen wie ThO_2 , ThS_2 , $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ und $\text{Th}(\text{SO}_4)_2$ vor. Diese findet man in unterschiedlichen Massenanteilen in Mineralien, Gesteinen (Massenanteil: $2,0 \cdot 10^{-4} \%$ bis $8,0 \cdot 10^{-4} \%$, je nach Gesteinsart) und Böden. Die spezifischen Aktivitäten reichen von 3,6 kBq Th 232/g (Thorianit mit 90 % ThO_2) über 0,3 kBq Th 232/g (Monazitsand aus Australien) bis zu $2,0 \cdot 10^{-6}$ kBq Th 232/g (Böden in Deutschland). Der mittlere Aktivitätsgehalt der Erdkruste beträgt $3,3 \cdot 10^{-5}$ kBq Th 232/g (RÖM 92, AKI 93, ISH 93). Thorium und seine Folgeprodukte sind somit Teil des natürlichen Kreislaufes. Man findet sie in Luft, Wasser und Nahrung und damit zwangsläufig auch im Körper und in den Ausscheidungen des Menschen.

| | | |
|---------|--|----------|
| Luft | 1,2 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (Berlin) | (Kol 85) |
| Wasser | 0,9 mBq/l (Yugoslawien) | (Pic 68) |
| Nahrung | 0-30 mBq/kg Frischgewicht (New York) | (Fis 87) |

Tabelle 3.1: Th 232 in Luft, Wasser und Nahrung

Thorium und seine Tochternuklide tragen daher einen Teil zur natürlichen externen und inneren Strahlenexposition des Menschen bei.

3.3 Zerfallsdaten

Insgesamt 25 Isotope des Thoriums sind bekannt. Sie umfassen die Massenzahlen von 212 bis 236 und sind alle instabil. Für das vorliegende Untersuchungsvorhaben sind in erster Linie die natürlich vorkommenden Isotope Th 228, Th 230 und Th 232 relevant. Th 228 und Th 232 entstammen der Th 232 - Zerfallsreihe. Th 230 tritt als Zerfallsprodukt der U 238 - Zerfallsreihe auf. Das künstlich erzeugte Th 229 ist insofern von Bedeutung, als es bei der Probenaufbereitung als innerer Standard (Tracer) zur Ausbeutebestimmung eingesetzt wurde. Die Zerfallsreihen und α -Energien der für die Inkorporationsüberwachung relevanten Nuklide sind in den folgenden Abbildungen (Abbildung 3.1 - Abbildung 3.3) dargestellt und in der Tabelle 3.2 aufgeführt.

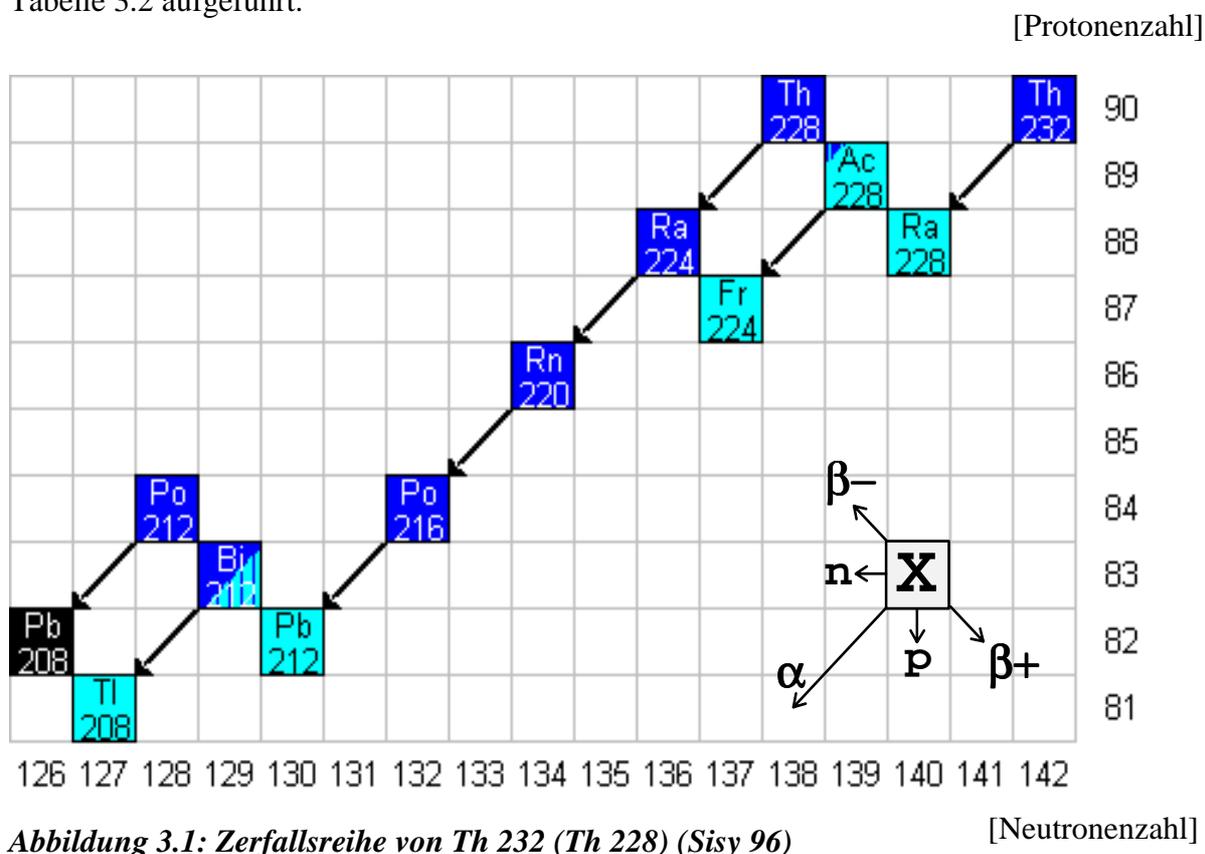


Abbildung 3.1: Zerfallsreihe von Th 232 (Th 228) (Sisy 96)

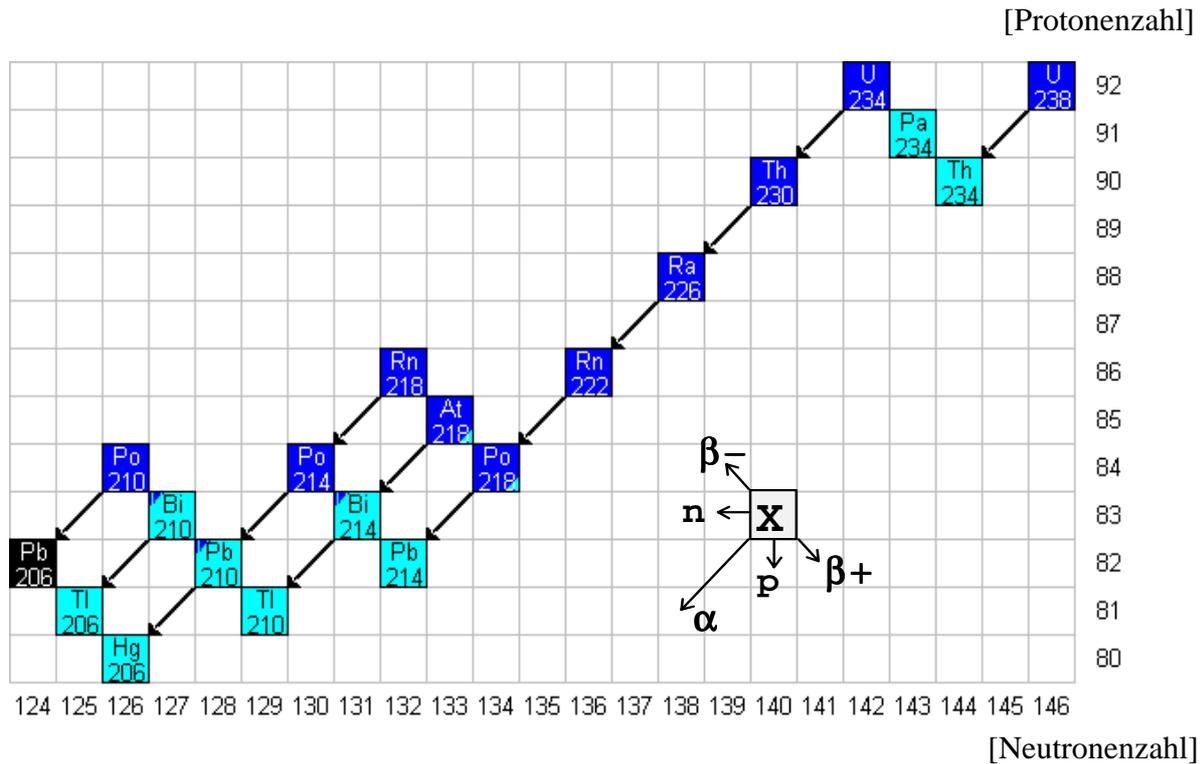


Abbildung 3.2.: Zerfallsreihe von U 238 (Th 230) (Sisy 96)

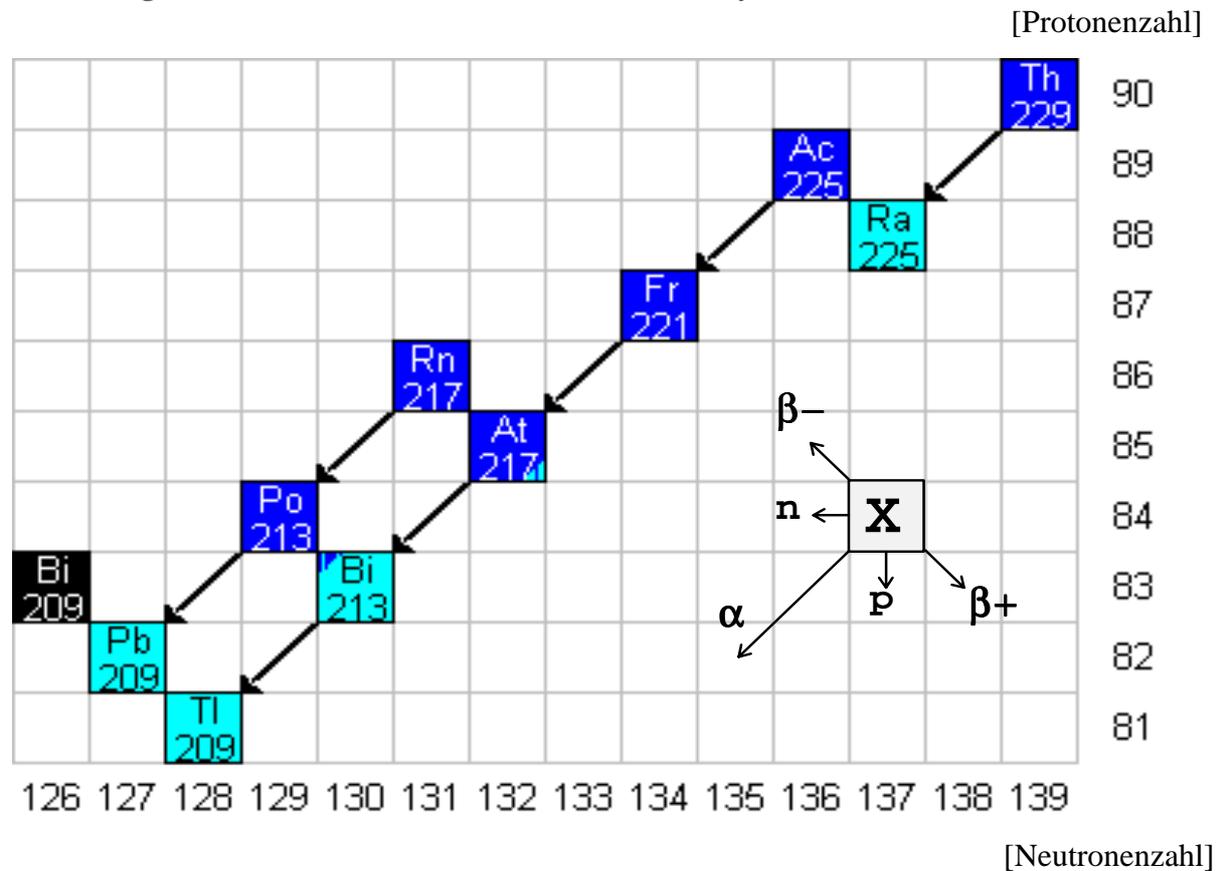


Abbildung 3.3: Zerfallsreihe von Th 229 (Sisy 96)

| Nuklid | α -Energie [MeV] | Übergangswahrscheinlichkeit [%] |
|--|-------------------------|---------------------------------|
| Th 229 $T_{1/2} = 7,340 \text{ E}+03 \text{ a}$ | 4,688000 | 0,150000 |
| | 4,761000 | 0,630000 |
| | 4,765500 | 0,267000 |
| | 4,797800 | 1,270000 |
| | 4,809000 | 0,220000 |
| | 4,814600 | 9,300000 |
| | 4,833000 | 0,290000 |
| | 4,837000 | 4,800000 |
| | → 4,845300 | 56,199998 ← |
| | 4,861000 | 0,180000 |
| | 4,901000 | 10,200000 |
| | 4,929000 | 0,110000 |
| | 4,967500 | 5,970000 |
| | 4,978500 | 3,170000 |
| | 5,033000 | 0,240000 |
| | 5,050000 | 5,200000 |
| 5,052000 | 1,600000 | |
| Th 230 $T_{1/2} = 7,538 \text{ E}+04 \text{ a}$ | 4,367800 | 0,310000 |
| | 4,476000 | 0,120000 |
| | 4,621000 | 23,400000 |
| | → 4,687500 | 76,300001 ← |
| Th 228 $T_{1/2} = 1,913 \text{ E}+00 \text{ a}$ | 5,138700 | 0,050000 |
| | 5,175000 | 0,180000 |
| | 5,212000 | 0,360000 |
| | 5,340500 | 26,699999 |
| | → 5,423300 | 72,700000 ← |
| Th 232 $T_{1/2} = 1,405 \text{ E}+10 \text{ a}$ | 3,830000 | 0,200000 |
| | 3,953000 | 23,000000 |
| | → 4,010000 | 76,999998 ← |

→←: Hauptzerfallslinie (HL)

Tabelle 3.2: Energielinien des α -Zerfalls ausgewählter Thoriumnuklide (Sisy 96)

3.4 Verwendung



3.4.1 Vorkommen und Gewinnung

1979 verteilten sich die als sicher angenommenen Thoriumreserven (1 Mio to) wie folgt:

| | |
|------------|--|
| Türkei: | 330.000 to (ThO ₂) |
| Indien: | 319.000 to (ThO ₂) |
| Norwegen: | 132.000 to (ThO ₂) |
| USA: | 122.000 to (ThO ₂) |
| Brasilien: | 68.000 to (ThO ₂) (RÖM 92) |

Thorium bildet Mischkristalle mit CePO₄ in Monazit und mit ZrSiO₄ in Zirkon. Diese Mineralien sind die Rohstoffe für die großtechnische Thoriumgewinnung, wobei Monazitsande die weitaus größere Bedeutung haben.

Erster Schritt der Aufbereitung von Thoriumverbindungen ist die Anreicherung durch Zerkleinerung und anschließende Flotation. Danach wird das Konzentrat mit Schwefelsäure oder konzentrierter Natronlauge aufgeschlossen. Das Thorium wird mit organischen Lösemitteln extrahiert oder mit Fällungsmitteln (Phosphat, Oxalsäure) aus der Aufschlusslösung ausgefällt und durch Calzinieren in ThO₂ überführt.

3.4.2 Industrielle Anwendung

In verschiedenen anthropogenen Produkten sind Beimengungen von Thoriumverbindungen enthalten. In einigen industriellen Prozessen wird thoriumhaltiges Material als Hilfsstoff eingesetzt. Dabei muss unterschieden werden, ob die thoriumhaltigen Bestandteile gezielt zugeführt werden (thoriert) oder ein natürlich bedingter Anteil des Rohstoffes sind. Man unterscheidet deshalb zwischen thorierten und thoriumhaltigen Substanzen.

Werden Produkte thoriert, so möchte man ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften ändern und die Qualität erhöhen. Die Radioaktivität spielt bei den hierbei erzielten Materialeigenschaften meist keine Rolle und ist eine unerwünschte Begleiterscheinung. Auch bei der Verwendung thoriumhaltiger Substanzen ist die Radioaktivität im allgemeinen nicht Zweck der Anwendung.



3.4.3 Beispiele industrieller Anwendungen

Die Anwendung thoriierter Substanzen ist vielfältig und soll nur in Auszügen aufgeführt werden (RÖM 93, AKI 93).

Nukleare Anwendung:

- In der Form des Oxides und Dicarbids in Mischung mit Uranverbindungen als Brutstoff in gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren ($\text{Th } 232 \text{ (n,}\gamma\text{) Th } 233 \xrightarrow{\beta^-} \text{Pa } 233 \xrightarrow{\beta^-} \text{U } 233$)

Der verbreitete Einsatz von Thorium in industriellen Anwendungen und Produkten beruht auf dadurch erzielbaren besonderen chemischen und physikalischen Eigenschaften:

Temperaturbeständigkeit, Zunderfestigkeit, katalytische Wirkung, hohe thermische Stabilität, gute Wärmeleitfähigkeit, niedriger Dampfdruck, geringe Reaktivität gegenüber Metallen, erhöhte Elektronenemission, Getter-Wirkung

Einige technische Anwendungen:

- Einsatz von reinem Thorium im Elektronenröhrenbau und bei Quecksilberlampen
- Legierungszusatz in der Luft- und Raumfahrtindustrie und bei der Herstellung elektrischer Kontakte als Thoriumdioxid bei der Thermistorherstellung (Th-Cu-Ag)
- Zusatzstoff in Katalysatoren (Pt-Th-Legierungen bei der Ammoniak-Verbrennung, Thoriumoxid bei der Dehydratation und Dehydrierung von Alkoholen, Thoriumdioxid in der Abgasreinigung)
- Verarbeitung von Thoriumnitrat zur Herstellung hell leuchtender Gaslampen mit thorierten Glühstrümpfen (Campinglampen)
- Dotierung von Wolframelektroden mit Thoriumdioxid für das WIG-Schweißen
- Feuerfestes Material als Tiegelmateriale bei Metallschmelzen und als Schlichtematerial oder Formsand in Gießereien (Thoriumdioxid in Zirkondioxid oder Zirkonsilicat)
- Verwendung bei der Herstellung elektrischer Glühdrähte in der Lampentechnologie (Thoriumnitrat)



4 Natürliches Thorium in Stuhl und Urin

4.1 Grundsätzliches

Thorium und seine Folgeprodukte sind in der Atemluft, dem Trinkwasser und in Lebensmitteln weit verbreitet. Dementsprechend gelangt es in den Körper des Menschen. Dort wird es, abhängig von Zufuhrart und biokinetischen Eigenschaften, anteilig in den Körperorganen deponiert und über Urin und Stuhl ausgeschieden.

Beeinflusst wird die Höhe der natürlichen Thoriumzufuhr von ortsbedingten geogenen Hintergrundkonzentrationen sowie durch die Lebensgewohnheiten der jeweiligen Person. Aufgrund dieser Tatsache sind die Messwerte der natürlichen Thoriumausscheidung insbesondere beim Stuhl starken individuellen und zeitlichen Schwankungen unterworfen. Diese Unterschiede erschweren die Abschätzung der natürlichen Thoriumausscheidung.

Die Kenntnis der Höhe und der Schwankungsbreite des natürlichen Untergrunds ist jedoch notwendig, um eine mögliche berufliche Inkorporation von der natürlichen Thoriumaufnahme unterscheiden zu können.

Weitere Hinweise auf eine möglicherweise erfolgte berufliche Inkorporation gibt der Nuklidvektor der Thoriumisotope in den Ausscheidungen. Th 228 ($T_{1/2} = 1,9$ a) entstammt zu einem erheblichen Anteil aus dem Zerfall des Ra 228 ($T_{1/2} = 5,7$ a). Eine Gleichgewichtsbetrachtung zeigt, dass nach ca. einem Jahr etwa 50% des Th 228 allein durch Ra 228 aufgebaut sind (Eik 98). Die höhere Mobilität des Radiums gegenüber Thorium beim Übergang von der Geosphäre in die Hydrosphäre (Wash Out) führt z.B. in Wasser zu einem Aktivitätsverhältnis von Th 228 / Th 232 > 1 .

Die Fachliteratur geht häufig von einem Aktivitätsverhältnis von Th 228 / Th 232 in der Biosphäre von eins aus. Dies ist jedoch aus geophysikalischen und metabolischen Gründen falsch (Zin 98). Das Verhältnis von Th 228 / Th 232 für Nahrungsmittel muss größer als eins sein (Eik 98).

Da sich die Isotopenzusammensetzung des beruflich inkorporierten Thoriums (in Mineralien Th 228/Th232 < 1) vom Nuklidvektor des über Nahrung zugeführten Thoriums unterscheidet, kann dies weitere Hinweise auf die Herkunft des ausgeschiedenen Thoriums geben.

4.2 Literaturdaten natürlicher Thoriumausscheidung

Bis Mitte 1985 wurden die Werte der ICRP 23 als Standardwerte der natürlichen Thoriumausscheidung angesehen. Die Werte der ICRP 23 beruhen auf der Pavlovskaya-Studie (Pav 66). Bei dieser Studie wurden die Organe von 50 Unfallopfern und an Herzversagen gestorbenen Personen untersucht.

| Quelle | Stuhl | Urin |
|---------|----------|----------|
| ICRP 23 | 2,9 µg/d | 0,1 µg/d |

Tabelle 4.1: Natürliche Thoriumausscheidung (ICRP 23)

Eine weitere Möglichkeit zur Abschätzung der natürlichen Thoriumausscheidung ist die Bestimmung des Thoriumgehaltes von Nahrungsmitteln. Dabei werden die Lebensmittel zur einen Hälfte als Nahrung zugeführt und der Rest zur Bestimmung des Thoriumgehaltes verwendet. Mit dieser Methode lassen sich sehr zuverlässige Abschätzungen durchführen.

| Quelle | Ort | Th 232 | Th 228 | Th 230 |
|---------------|-----------|-----------|----------|-----------|
| Frindik, 1983 | Karlsruhe | 5,9 mBq/d | 46 mBq/d | 9,4 mBq/d |

Tabelle 4.2: Thoriumaufnahme (Lebensmitteluntersuchung) (Frin 96)

Ab 1986 wurde gezielt damit begonnen die Ausscheidung des natürlich aufgenommenen Thoriums über den Stuhl und den Urin zu untersuchen (Bey 98-1). Gemessen an ihrer Bedeutung für die Inkorporationsüberwachung liegen bisher nur wenige Messergebnisse von direkten Ausscheidungsuntersuchungen vor.



| Quelle | Anzahl der Individuen | Mittelwert [mBq/d] | Streuung [mBq/d] | Ort |
|-----------------------------------|-----------------------|--------------------|------------------|-------------|
| Dang et al. (1986) (Dan 86) | 16 | 9,2 | 3,3 - 17,4 | Bombay |
| Shiraishi et al. (1992) (Shir 92) | 62 | 1,7 | 0,6 - 4,7 | Japan |
| Linsalata et al. (1986) (Lins 86) | 10 | 0,74 | 0,15 - 1,7 | New York |
| Sahre (1994) (Bey 98-2) | 15 | 2,7 | 0,7 - 5,9 | Dresden |
| Beyer, Biehl (1992) (Bey 98-2) | 6 | 6,9 | 0,8 - 14,0 | Jülich |
| Naumann et al (1998) (Nau 98) | 5 | 5,4 | 1,7 - 16 | Berlin |
| Zingler et al. (1998) (Zin 98) | 23 | 6,4 | 2,0 - 11,9 | Deutschland |
| Schupfner (1998) (Schu 98) | 3 | 1,7 | < 0,5 - 4,9 | Oberpfalz |

Tabelle 4.3: Natürliche Thoriumausscheidung (Th 232) über Stuhl

| Quelle | Anzahl der Individuen | Mittelwert [mBq/d] | Streuung [mBq/d] |
|-------------------------------|-----------------------|--|--|
| Sunta et al. (1987) (Sun 87) | 10 | 0,049 | 0,027 - 0,089 |
| Dang et al. (1989) (Dan 89) | 11 | 0,011 | 0,0049 - 0,019 |
| Riedel et al. (1993) (Rie 93) | 7 | 0,033 | 0,013 - 0,051 |
| Roth et al. (1997) (Roth 97) | 55 | m ¹⁾ : 0,055 w ²⁾ : 0,041 | m ¹⁾ : 0,017 - 0,121 w ²⁾ : 0,009 - 0,099 |

¹⁾ Proben männlicher Personen

²⁾ Proben weiblicher Personen

Tabelle 4.4: Natürliche Thoriumausscheidung (Th 232) über Urin

4.3 Natürliches Isotopenverhältnis des Thorium

Neben den Absolutwerten können die Isotopenverhältnisse zwischen den Thoriumnukliden einen Hinweis auf beruflich aufgenommenes Thorium geben. Entsprechend den spärlichen Daten für die Einzelnuklide Th 228, Th 230, Th 232 liegen auch hier nur wenige Messwerte vor.

| Quelle | Urin | |
|-------------------------|-----------------|-----------------|
| | Th 228 / Th 232 | Th 228 / Th 230 |
| Karpas et al. (Kar 96) | > 4 | - |
| Quelle | Stuhl | |
| | Th 228 / Th 232 | Th 228 / Th 230 |
| Seymour et al. (Sey 92) | 4,3 | 2,3 |
| Fisenne et al. (Fis 87) | 4,8 | 3,2 |
| Zingler et al. (Zin 98) | 7,2 | 1,1 |
| Naumann et al. (Nau 98) | 7,8 | 2,9 |

Tabelle 4.5: Literaturwerte natürlicher Th-Isotopenverhältnisse

4.4 Daten natürlicher Thoriumausscheidung von der Messstelle des LfU

An der Messstelle für Radiotoxikologie werden im Laufe eines Jahres zahlreiche Stuhluntersuchungen durchgeführt. Diese wurden auch im Hinblick auf natürliche Nuklide ausgewertet. Ergebnisse für natürliche Thoriumausscheidung fallen somit als Nebenprodukt der Ausscheidungsanalytik gemäß §63 der Strahlenschutzverordnung an.

Bis Ende 1996 wurden 78 Stuhlproben von 19 verschiedenen Personen aus Bayern untersucht und ausgewertet.

| Nuklid | Stuhl | | Urin ¹⁾ | |
|--------|-------------------------------------|--------------------------|-------------------------------------|--------------------------|
| | Mittelwert ³⁾ [mBq/d] | Streubreite [mBq/d] | Mittelwert ³⁾ [mBq/d] | Streubreite [mBq/d] |
| Th 232 | 3,6 | <NWG ²⁾ - 6,0 | 0,12 | <NWG ²⁾ - 0,2 |
| Th 228 | 29 | <NWG ²⁾ - 82 | 0,9 | <NWG ²⁾ - 2,7 |

¹⁾ Werte abgeleitet nach ICRP 23

²⁾ NWG: Nachweisgrenze der 3 Tage-Messung

³⁾ Nur aus Messwerten über den Nachweisgrenzen gebildet

Tabelle 4.6: Natürliche Thoriumausscheidung über Stuhl, LfU Kulmbach (1996)

Mit Kenntnis der natürlichen Ausscheidung kann ein konstanter Wert für das betrachtete Nuklid und für das Lebensumfeld des Probanden angenommen werden. Bei der Auswertung der Ausscheidungsanalysen beruflich exponierter Personen kann dieser Wert (natürlicher Untergrund) berücksichtigt werden, indem er vom eigentlichen Messwert subtrahiert wird.

Im Rahmen dieses Untersuchungsvorhabens wurde bei der Ausscheidungsanalyse von Urinproben darauf verzichtet. Stattdessen wurde ein Kollektiv von 17 beruflich nicht exponierten Personen aus Oberfranken ausgewählt. Die ausgewählten Personen dienten als Kontrollgruppe, um an ihr eine eventuelle Erhöhung der Messwerte bei beruflich exponierten Personen aufzuzeigen. Voraussetzung für diese Vorgehensweise sind gleiche Messbedingungen sowie die identische Aufbereitung der Proben.

| Nuklid | Mittelwert [mBq/d] | Streubreite [mBq/d] |
|----------------------|--------------------|---------------------|
| Th 232 ¹⁾ | 0,2 | 0,1 - 0,5 |

¹⁾ Messwerte und Nachweisgrenzen

Tabelle 4.7: Natürliche Thoriumausscheidung über Urin bei 17 beruflich nicht exponierten Personen aus Oberfranken, LfU Kulmbach (1996)

Abhängig von den Ernährungsgewohnheiten der Person, deren Ausscheidungsproben untersucht werden, können sich insbesondere bei Stuhlproben erhebliche tägliche Schwankungen der Messwerte ergeben.

An der Meßstelle wurden im Rahmen des Untersuchungsvorhabens Stuhlproben einer Person über 11 Tage gesammelt. Am siebten Tag des Sammelzeitraums nahm die Versuchsperson innerhalb eines halben Tages 250 Gramm Paranüsse (Herkunftsland: Brasilien) zu sich. Die gammaspektrometrische Messung der Paranüsse ergab einen Gehalt von ca. 20 Bq Th 228/kg. Die Ergebnisse der Stuhluntersuchungen sind in Tabelle 4.8 und in Abbildung 4.1 dargestellt.

| Tag | Ausscheidung [mBq/d] | | | Th 228 / Th 232 |
|------------------|----------------------|--------|--------|-----------------------|
| | Th 228 | Th 230 | Th 232 | |
| 1 | 28,1 | 3,4 | 2,4 | 11,7 |
| 2 | 30,3 | 5,2 | 2,6 | 11,7 |
| 3 | 29,8 | 7,1 | 3,8 | 7,8 |
| 4 | 27 | 7,1 | 1,9 | 14,2 |
| 5 | 33 | 6,6 | 4 | 8,3 |
| 6 ¹⁾ | - | - | - | - |
| 7 (Paranüsse) | 43,8 | 6,0 | 4,6 | 9,5 |
| 8 | 324 | 7,2 | 3,4 | 95,3 |
| 9 | 2045 | 10,7 | 4,7 | 435,1 |
| 10 ¹⁾ | - | - | - | - |
| 11 | 271 | 4,7 | 1,3 | 208,5 |

¹⁾ keine Stuhlprobe

Tabelle 4.8: Natürliche Thoriumausscheidung über Stuhl bei einer männlichen Person, LfU Kulmbach (1998)

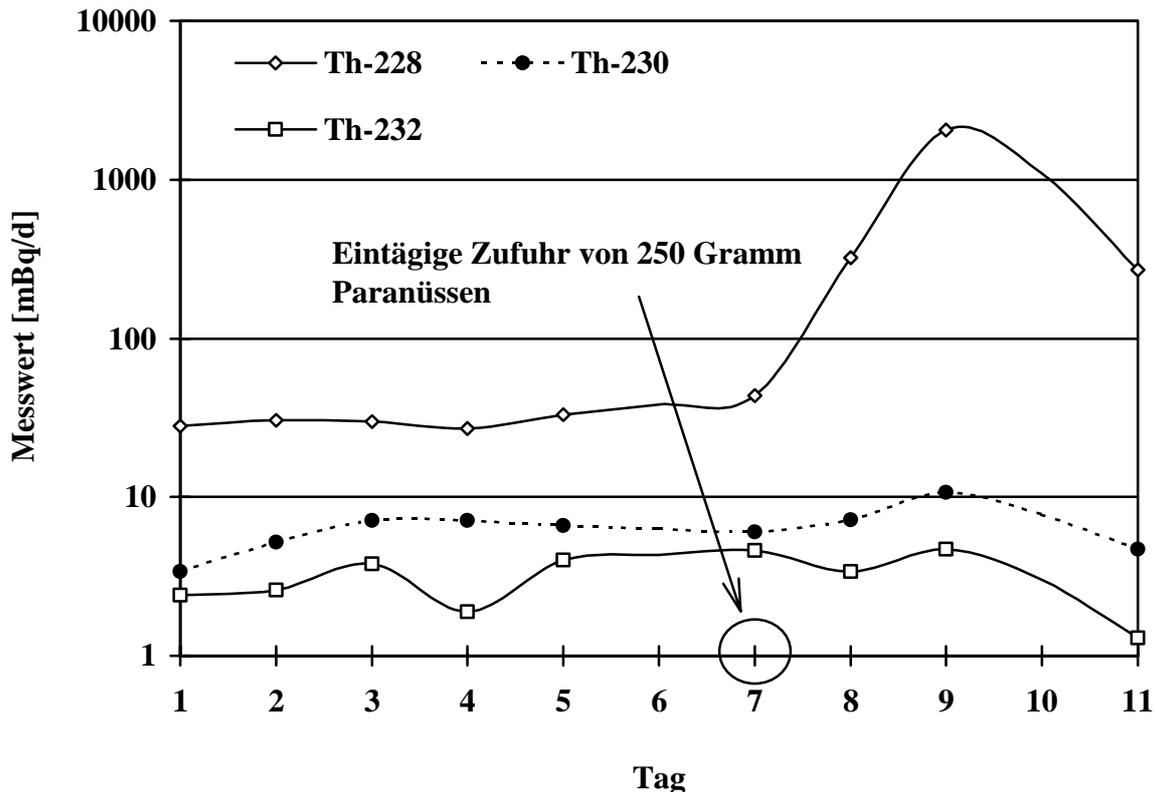


Abbildung 4.1: Natürliche Thoriumausscheidung über Stuhl bei einer männlichen Versuchsperson, LfU Kulmbach (1998)

Wie erwartet, steigt die ausgeschiedene Aktivität an Th 228 nach dem Verzehr der Paranüsse deutlich an. Die Aktivitäten von Th 230 und Th 232 bleiben dagegen annähernd konstant. Als Folge wird das Verhältnis von Th 228 / Th 232 gestört und die Interpretation der Ergebnisse wird erheblich erschwert.

4.5 Konsequenz für die Bewertung von Messwerten

Vergleicht man die zur Verfügung stehenden Daten, dann erkennt man die größenordnungsmäßige Übereinstimmung der Literaturwerte mit den Werten aus den eigenen Untersuchungen. Erkennbar sind außerdem Schwankungen der Thoriumwerte im Stuhl. Je nach Ernährungsgewohnheiten (Bsp. Paranüsse Kapitel 4.4) können sich enorme Unterschiede bei den Absolutwerten und den Nuklidvektoren der Thoriumnuklide ergeben. Die Festlegung diskreter Untergrundwerte für die betrachteten Thoriumnuklide erscheint problematisch.



Zuverlässiger ist die Betrachtung der Nuklidvektoren in den Ausscheidungsproben. Sämtliche thoriumhaltigen Werkstoffe mit denen die Probanden dieses Untersuchungsvorhabens umgehen, beinhalten Th 228 und Th 232 im Verhältnis < 1 , während der Quotient Th 228 / Th 232 aus natürlichen Quellen deutlich größer als eins ist.

Werte des Quotienten aus Th 228 und Th 232 in den Ausscheidungsproben, die im Bereich von eins oder sogar darunter liegen, deuten auf beruflich bedingte Inkorporation über Ingestion oder Inhalation hin.

Für die Radionuklide Th 230 und Th 232 schlägt Schupfner (Schu 98) ein Verfahren zur Beurteilung vor, welches sowohl die Absolutwerte als auch die Nuklidvektoren berücksichtigt. In einem Flussdiagramm werden den Messwerten verschiedene Entscheidungskriterien entgegengestellt. Als Ergebnis erhält man die Aussage, ob es sich über Nahrung inkorporiertes Thorium oder beruflich bedingt, inkorporiertes Thorium handelt. Die Wahrscheinlichkeit für eine Falschaussage liegt bei 10 %.

Bei einem Fachgespräch ("Körperaktivität durch natürliche Quellen"), veranstaltet durch die Leitstelle für Inkorporationsüberwachung des Bundesamtes für Strahlenschutz in Berlin (25./26.11.1996), wurden von der Arbeitsgruppe folgende Maximalwerte für die natürliche Thoriumausscheidung vorgeschlagen:

Thoriumausscheidung Urin : 0,1 mBq/d (Th 232)

Thoriumausscheidung Stuhl : 20 mBq/d (Th 232)

Diese Werte können nach Aussagen der Teilnehmer vereinzelt überschritten werden.

Bei der Bewertung und Einordnung der Ergebnisse der Ausscheidungsuntersuchungen im Rahmen des Vorhabens, werden die erwähnten Beurteilungskriterien berücksichtigt.



5 Eingesetzte Messtechnik

5.1 Ausscheidungsanalysen

Im folgenden wird in kurzer Form die Messtechnik beschrieben, die bei den analysierten Ausscheidungsproben zum Einsatz kam.

5.1.1 Alphaspektrometrie

Möchte man die Radionuklide Th 228, Th 230 und Th 232 gleichzeitig qualitativ und quantitativ in Umweltproben bestimmen, ist die Alphaspektrometrie mit Halbleiterdetektoren das Verfahren der Wahl. Die geringen Ausscheidungsraten für Thorium im Urin stellen hohe Anforderungen an das Mess-System und die Probenaufbereitung.

Wird die Alphaspektrometrie als Routinemessverfahren eingesetzt, ist im allgemeinen eine Nachweisgrenze des Messverfahrens von ca. 1 mBq/d für den 24h-Urin oder 24h-Stuhl gefordert. Bei ersten Messungen wurden für die Urinproben unter Routinebedingungen (Messzeit 260.000 sec., geometrische Efficiency ca. 20 %) keine Messwerte oberhalb der messtechnisch bedingten Nachweisgrenzen ermittelt. Daraufhin wurde die Messzeit auf 20 Tage (1.728.000 sec.) erhöht und die Messgeometrie verändert (Efficiency ca. 30 %). Mit diesen Maßnahmen konnten die notwendigen Nachweisgrenzen für Thorium in Urin für die erhöhten Anforderungen erreicht werden. Für 60 vermessene 24h-Urinproben ist durch die lange Messzeit ein minimaler Zeitaufwand von 100 reinen Messtagen nötig.

Für 24h-Stuhlproben ist eine Messzeit von 260.000 sec. ausreichend.

5.1.2 Auswertung der Spektren

Zur Auswertung der Alphaspektren der Urinproben wurde aus mehreren Gründen Th 232 als Leitnuklid herangezogen.

Th 228 entstammt zu einem erheblichen Anteil aus dem Zerfall des Ra 228 (siehe hierzu Kapitel 4.1). Der im allgemeinen höhere natürliche Untergrund des Th 228 unterliegt dementsprechend größeren Schwankungen. Dies führt zu Interpretationsproblemen bei der Bestimmung der beruflichen Strahlenexposition.

Von Vorteil bei der Auswertung ist ebenfalls die günstige Lage der Hauptlinie des Th 232 (4.01 MeV). Sie liegt in einem Energiebereich ohne Störungen durch Linien anderer Nuklide und nur geringer Untergrundzählrate. Selbst bei schlechter chemischer Abtrennung der Thoriumnuklide von anderen natürlichen Nukliden (z.B. Uran in der Thoriumfraktion) werden Haupt- und Nebenlinien des Th 232 nicht überlagert.

Bei schlechten Spektren besteht außerdem die Möglichkeit, dass sich die Linien des Th 228 und des Th 230 mit den Linien des Tracers Th 229 bzw. seiner Tochter (Ac 225) überlagern.

Bei den Alphaspektren der Stuhlproben spielen Störungen durch andere Nuklide eine weitaus geringere Rolle, da die Aktivitäten der natürlichen Thoriumnuklide im Bereich der Aktivitäten des Tracers (ca. 32mBq/Probe Th 229) liegen. Eine Zuordnung der gefundenen Linien zu den entsprechenden Nukliden wird dadurch vereinfacht. Dies wird besonders deutlich aus einem Vergleich zweier Alphaspektren (Abbildung 5.1: Stuhlprobe, Abbildung 5.2: Urinprobe).

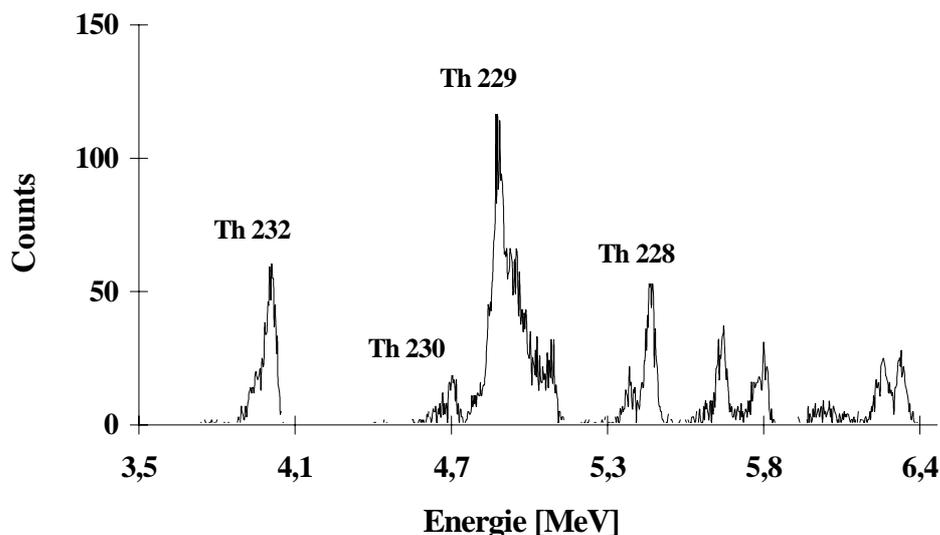


Abbildung 5.1: Alphaspektrum einer 24h-Stuhlprobe eines WIG-Schweißers (96036)

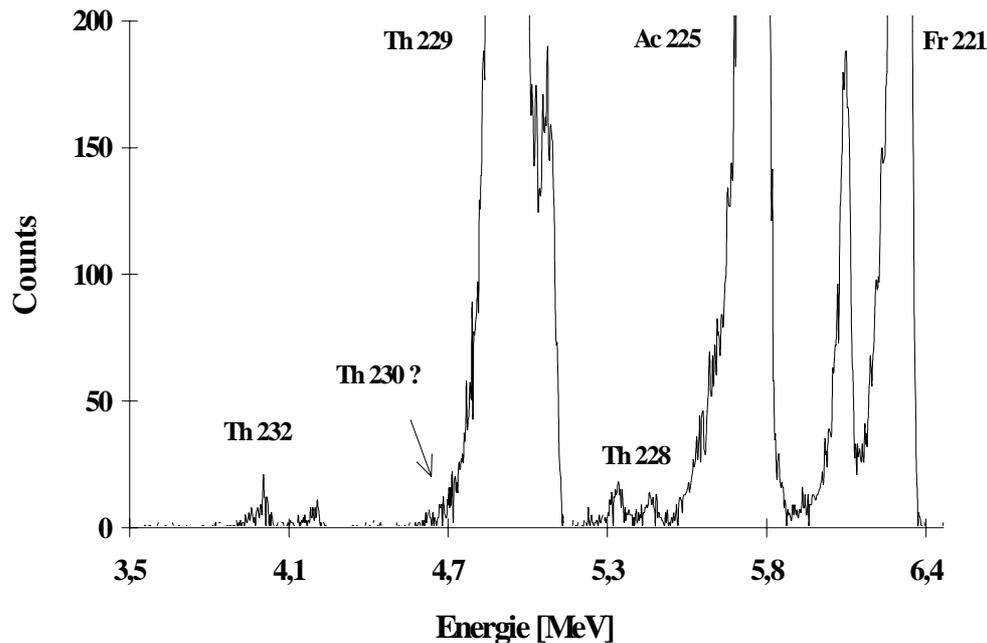


Abbildung 5.2: Alphaspektrum einer 24h-Urinprobe eines WIG-Schweißers (96037)

5.2 Materialproben

Bei den untersuchten Materialproben handelte es sich um kompakte, thoriumhaltige Werkstoffe, deren radiochemische Aufbereitung für die Alphaspektrometrie sehr schwierig ist und daher nicht durchgeführt wurde.

Die Gammaskpektrometrie erlaubt in diesem Fall ein schnelles und einfaches Aktivitätsscreening der Materialproben.

5.2.1 Gammaskpektrometrie

Wie bei der Alphaspektrometrie handelt es sich bei der Gammaskpektrometrie um ein energieauflösendes und damit nuklidspezifisches Messverfahren. Im Gegensatz zur Alphaspektrometrie kann, aufgrund der geringen Selbstabsorption der Gammastrahlung im Material, im allgemeinen auf eine aufwendige chemische oder mechanische Probenaufbereitung verzichtet werden. Die Gammaskpektrometrie ist aufgrund ihrer Zuverlässigkeit, Schnelligkeit und der hohen Energieauflösung ein wichtiges Messverfahren des praktischen Strahlenschutzes.



5.3 Umgebungsmessungen

Im Rahmen der Untersuchung wurden thoriumverarbeitende Betriebe besucht, um sich vor Ort ein Bild von möglicher externer und innerer Strahlenexposition machen zu können. Dabei leisten Dosisleistungsmessungen mit tragbaren Messgeräten wertvolle Hilfe.

5.3.1 Dosisleistungsmessung

Die Energiedosis ist eine wesentliche Größe zur Erfassung der biologischen Wirkung ionisierender Strahlung. Als Konsequenz des Reaktorunfalles in Tschernobyl erhielten 1987 die Landkreise und kreisfreien Städte Bayerns je ein Dosisleistungsmessgerät, verbunden mit der Aufgabe, die Gammaortsdosisleistung an verschiedenen Orten regelmäßig zu bestimmen. Die Umgebungs- und Anlagenüberwachung ist bis heute eines der Hauptanwendungsgebiete der Dosisleistungsmessgeräte. Weitere Einsatzgebiete sind die Messungen an Röntgenanlagen, Streustrahlungsmessungen, Messungen an Bildröhren und Störstrahlern, Überprüfungen von Abschirmungen und geologische Untersuchungen (Aut 91).



6 Modelle zur Ausscheidungsanalytik

6.1 Allgemeines

Radioaktive Stoffe können auf verschiedenen Wegen in den Körper gelangen und dort zur inneren Strahlenexposition beitragen. Bei der beruflich bedingten Strahlenexposition, die Gegenstand der vorliegenden Untersuchungen ist, sind insbesondere die Zufuhr über die Atemluft (Inhalation) und die orale Zufuhr (Ingestion) von Bedeutung.

Die aufgenommenen radioaktiven Substanzen verteilen sich im Körper, werden in verschiedenen Organen abgelagert (Depotbildung) und zu einem bestimmten Anteil sofort oder mit definierter zeitlicher Verzögerung wieder ausgeschieden. Das Verhalten im Körper wird dabei von den physikalisch-chemischen Eigenschaften des zugeführten Nuklids sowie von seinem Metabolismus im Körper bestimmt. Um diesem Verhalten Rechnung zu tragen, wurden komplizierte mathematische Modelle (Kompartimentmodelle) entwickelt und stetig weiter verbessert, die die Möglichkeit eröffnen eine qualitative und quantitative Aussage über den Weg des Nuklids im Körper zu treffen. Neben der Berechnung der Strahlenexposition einzelner Organe ermöglichen die biokinetischen und dosimetrischen Modelle anhand der Aktivitätswerte in den Ausscheidungen die Bestimmung der zugeführten Aktivität und der daraus resultierenden Effektivdosis.

6.2 ICRP 23

Wie in der Einführung angemerkt wird das Verhalten inkorporierter Teilchen im Körper wesentlich durch ihren Metabolismus im Körper bestimmt. Anatomische Gegebenheiten sowie das Stoffwechselgeschehen des Körpers unterliegen jedoch starken individuellen Schwankungen und Besonderheiten. Eine Beurteilung der Strahlenexposition verschiedener Individuen bei individueller Betrachtung der biologischen Voraussetzungen wäre nicht praktikabel. Deshalb hat die ICRP (International Commission of Radiation Protection) 1975 in einer Veröffentlichung (ICRP 23) Standardwerte eines Durchschnittsmenschen in allen Einzelheiten festgelegt. Dieser Modellmensch ist Grundlage der gängigen biokinetischen Modelle und Referenzperson der gültigen deutschen Strahlenschutzverordnung.

6.3 ICRP 30

Die ICRP 30 stellt die biokinetischen und dosimetrischen Modelle für die gegenwärtig gültige Strahlenschutzverordnung. Das Modell von 1979 besteht aus drei Teilmodellen: Dem Magen-Darm-Trakt, den Atmungsorganen (Atem-Trakt) und den Körperflüssigkeiten mit Organen (Körper).

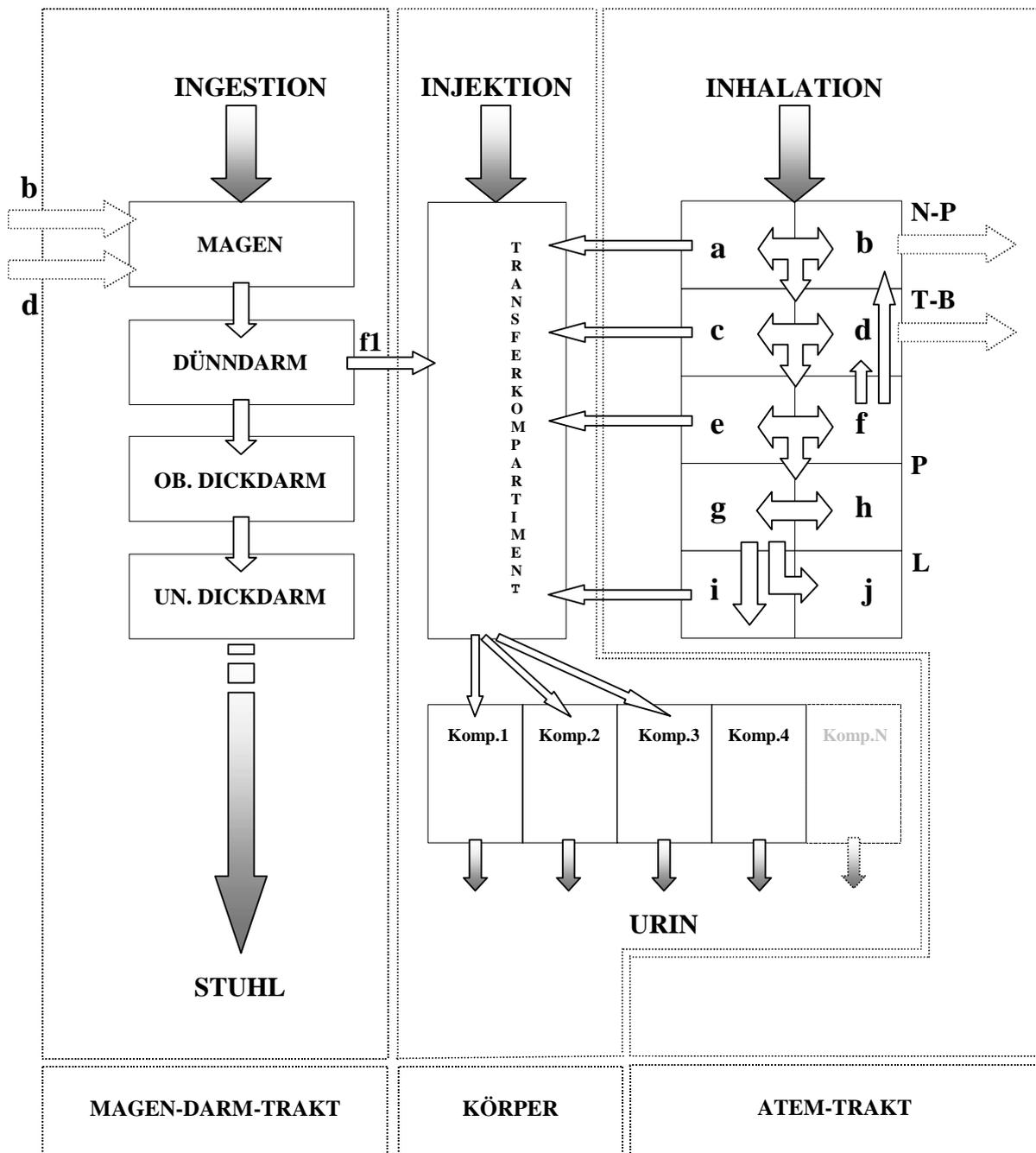


Abbildung 6.1: Modelle nach der ICRP 30



Die Grundzüge des Modells werden für alle Nuklide gleich angewandt. Nuklid- und Verbindungsspezifische Parameter werden eingeführt um z.B. die gastrointestinale Absorption im Dünndarm zu beschreiben (f₁-Faktor). Die anteilmäßige Ablagerung eingeatmeter Teilchen im Respirationstrakt wird von der Größe des Aerosols (AMAD: 0,1 - 10,0 µm) bestimmt. Der Übergang vom Atemtrakt in Magen und Körper, sowie die Retention in der Lunge wird von drei Parametern (Retentionsklassen) beschrieben, die die Verweildauer im pulmonalen Bereich der Lunge charakterisieren (D: Day / HWZ: 12h, W: Week / HWZ: 50d, Y:Year / HWZ: 500d). Sie sind abhängig von der chemischen Verbindung in der die inhalierte radioaktive Substanz vorliegt. Grundlage des Modells ist der Referenzmensch der ICRP 23.

6.4 ICRP 54

Die ICRP 54 von 1988 beschäftigt sich mit der individuellen Überwachung von Personen, die beruflichen Umgang mit radioaktiven Stoffen haben. Sie beinhaltet metabolische Daten für 39 verschiedene Nuklide die deren Verteilung, Ablagerung und Ausscheidung beschreiben und mathematische Gleichungen, die die biologischen Halbwertszeiten in den einzelnen Kompartimenten berücksichtigen. Die Nuklide wurden aufgrund ihrer radiologischen Relevanz bei der beruflichen Strahlenexposition und ihrem Vorkommen in Forschung, Medizin, Industrie und Kerntechnik ausgewählt. Im Anhang der Veröffentlichung finden sich u.a. Ausscheidungsraten über Urin und Stuhl bei einmaliger und kontinuierlicher Zufuhr. Diese ermöglichen die Bestimmung der Zufuhr für den Einzelfall und den Vergleich mit gültigen Grenzwerten. Grundlage der ICRP 54 sind die Modelle der ICRP 30.

6.5 Metabolische Daten für Thorium

Auf Grundlage der ICRP 30 und ICRP 54 wurde ein Berechnungsprogramm in der Programmiersprache Visual Basic 4.0 Professional erstellt, mit dem die Ausscheidungsraten über Stuhl oder Urin nach einmaliger und kontinuierlicher Inhalation oder Ingestion berechnet werden können. Mit diesem Hilfsmittel können Ausscheidungsraten und Körperaktivitäten verschiedenster Nuklide für individuelle Bedingungen der Inkorporation bestimmt werden.

Ein Vergleich der errechneten mit den der Richtlinie für die Ermittlung der Körperdosen bei innerer Strahlenexposition gemäß §§ 63,63a StrlSchV (GMBI 94) angegebenen Ausscheidungs- und Retentionswerten zeigte keine nennenswerten Abweichungen.

In den folgenden zwei Diagrammen sind die zeitlichen Verläufe der Ausscheidungs- und Retentionsraten abgebildet, die für die durchgeführten Ausscheidungsuntersuchungen von Bedeutung sind.

Aus Abbildung 6.2 wird ersichtlich, dass schon nach 5-tägiger kontinuierlicher Inhalation (eine Arbeitswoche) ca. 85 % der maximal möglichen Ausscheidungsrate über den Stuhl erreicht wird. Wird der Umgang mit Thorium nach fünf Tagen abgebrochen (Wochenende, Urlaub) ergibt sich der Verlauf der zweiten Kurve aus Abbildung 6.2. Dieses Verhalten ermöglicht die Einschätzung der beruflichen Inkorporation während eines definierten Zeitraums des Umgangs mit radioaktiven Stoffen (siehe Kapitel "Untersuchungen zur Strahlenexposition in einem Betrieb der Lampentechnologie").

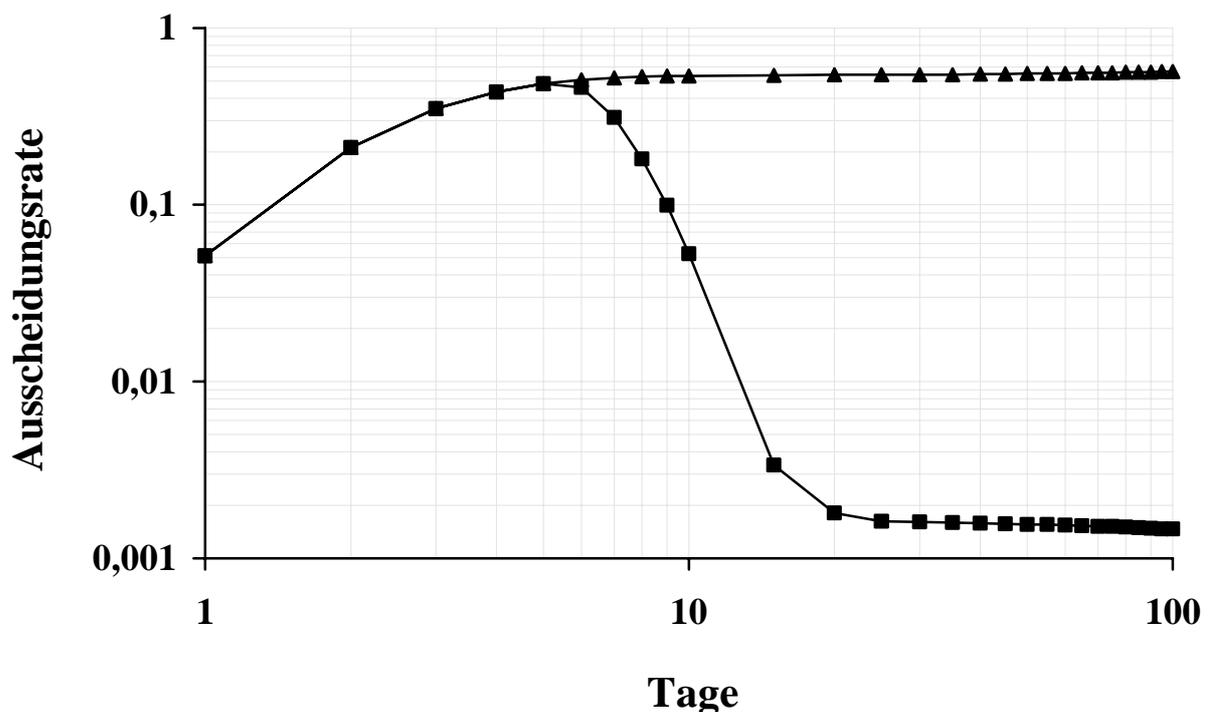


Abbildung 6.2: Vergleich der Ausscheidungsraten bezogen auf die Zufuhr über den Stuhl für Th 232 bei kont. Inhalation (⊙) und bei Abbruch der Zufuhr nach fünf Tagen (⊙) nach ICRP 30,54 (Retentionsklasse Y, Amad 1 μ m)

Ausschlaggebend für die Auswahl von möglichen Probanden für den Nachweis vorliegender Körperdepots ist ihre langjährige und kontinuierliche Exposition. Dies wird besonders aus Abbildung 6.3 deutlich. Beträgt die kontinuierliche Zufuhr von Thorium über Inhalation nur

einige zehn mBq/d (realistische Zahl) gelangt man erst nach 3 bis 5 Jahren in Bereiche, in denen die gemessenen Tagesausscheidungen mit dem gewählten Messverfahren der Alphaspektrometrie sicher nachzuweisen sind und ca. um den Faktor 10 - 100 über der natürlichen Ausscheidung liegen. Wird die Exposition nach diesem Zeitraum beendet, verringert sich die Ausscheidungsrate nur zögerlich, da einmal aufgebaute Körperdepots nur langsam wieder abgebaut werden. Für die Auswahl der Probanden bedeutete dies, dass eine langjährige kontinuierliche Tätigkeit von größerer Bedeutung ist, als kurzfristige Unterbrechungen.

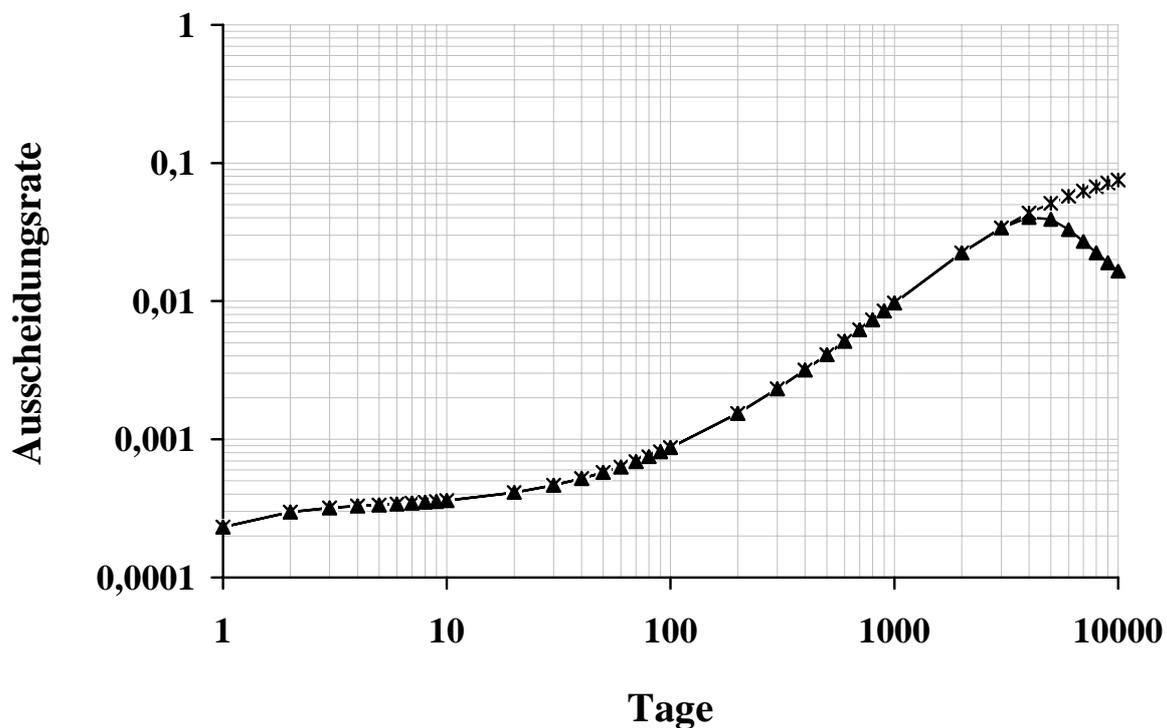


Abbildung 6.3: Verlauf der Ausscheidungsrate bezogen auf die Zufuhr über den Urin für Th 232 bei kont. Inhalation(◆) und bei Abbruch der Zufuhr(⊙) nach zehn Jahren nach ICRP 30,54 (Retentionsklasse Y, Amad 1 μm)

Aus den Abbildungen 6.2 und 6.3 wird ersichtlich, dass sich Urinproben für den Nachweis langjährig aufgebaute Körperdepots eignen, während Stuhlproben Rückschlüsse auf kurzzeitige Inkorporation zulassen.

6.6 Aktuelle Entwicklung

Die kurz beschriebenen Modelle sind die Grundlage der dosimetrischen Berechnungen und damit wissenschaftliche Basis der gegenwärtigen Strahlenschutzverordnung. Ermittelte Aktivitätszufuhren und Dosisberechnungen dieser Arbeit gründen auf den beschriebenen Modellen.

Während für den Magen-Darm-Trakt noch das 4-Kompartiment-Modell gültig ist, gibt es für den Atemtrakt und die Körper-Kompartimente neuere und realistischere Ansätze.

Das Atemmodell der ICRP 66 verfeinert das Kompartimentmodell der ICRP 30 und seine internen Austauschvorgänge, legt alters- und aerosolabhängige Depositionsparameter fest, berücksichtigt eine größere Bandbreite des AMAD's (0,0006 bis 100 μm), betrachtet die Eigenschaften des inhalierten Aerosols (z.B. Geometrie) und unterscheidet zwischen dem individuellen Atemverhalten von Arbeitern und übriger Bevölkerung. Die Änderungen in Bezug auf die Retention im Atemtrakt bewirken eine rechnerische Erhöhung des Anteils (f_1 -Wert), der aus dem Magen-Darm-Trakt in den systemischen Kreislauf übertritt (Noßke 98).

Bei der Betrachtung des Restkörpers wurden für einige Nuklide weit kompliziertere Modelle (Thorium: ICRP 69) entwickelt. Sie beruhen auf physiologischen Daten und können dadurch auf verschiedene Altersgruppen angewandt werden und den Aktivitätsverlauf in Organen, Ganzkörper und Ausscheidungen realistischer darstellen (Noßke 98).

In den nächsten Jahren sind Revisionen der ICRP 30 und der ICRP 54 geplant (ICRP 78).

Neuere Untersuchungen (Dan 92, Leg 97) gelangen zum Ergebnis, dass die Ausscheidungsraten des Thoriums über den Urin niedriger sind als bisher angenommen. Grund dafür könnte eine teilweise Ausscheidung des systemischen Thoriums über Stuhl sein, während die ICRP 54 davon ausgeht, dass 100 % ($f_u=1$) über den Urin ausgeschieden werden. Eine andere Erklärung sind zu kurz angesetzte biologische Halbwertszeiten der ICRP 54 (z.B. 8000 Tage für das Skelett). Ansätze mit längeren biologischen Halbwertszeiten, bei denen Rezirkulationen im Körper berücksichtigt werden, sind in der ICRP 69 zu finden. Dang und Legget (Dan 92, Leg 97) kommen zu Werten für die Thoriumausscheidung über den Urin, die um den Faktor 4 bis 5 niedriger liegen als nach den alten bisherigen Modellen angenommen.

Andere Autoren (Ber 98) haben in aufwendigen Versuchen mit simulierter Lungenflüssigkeit nachgewiesen, dass der Übergang des Thoriums von der Lunge nach Inhalation in das Transferkompartiment wesentlich langsamer vonstatten geht als bisher angenommen. Bei den Ver-



suchen wurden Halbwertszeiten für den Übergang von ca. 900 Jahren ermittelt. Auch diese Untersuchung ist ein Hinweis auf die wohl zu hoch angesetzten Ausscheidungsraten der gültigen Modelle. Erweisen sich die o. a. Annahmen als richtig, müssten die in diesem Vorhaben ermittelten Aktivitätszufuhren nach oben korregiert werden.

7 Probenaufbereitung der Urin- und Stuhlproben

Die Probenaufbereitung der 24h-Urin- und Stuhlproben geschieht nach einer an der Messstelle für Radiotoxikologie entwickelten und standardisierten Methode. Ihre Anwendbarkeit hat sich für die verschiedenen Aktinide bewährt und konnte durch die Teilnahme an nationalen und internationalen Ringversuchen verifiziert werden.

Grundsätzlich gliedert sich die Probenaufbereitung von Ausscheidungsproben in drei wesentliche Arbeitsschritte:

1. Veraschung der Probe / Aufschluss

- Verminderung des Probenvolumens
- Zerstörung aller organischen Bestandteile und Verringerung des Silicatanteils
- Überführen der Probe in wasserlösliche Form

eingesetzte Verfahren:

Trockenveraschung in Veraschungsofen, Oxidative Nassveraschung, Mikrowellenaufschluss

2. Chemische Abtrennung

- Gemeinsame Separation der Nuklide von Matrixelementen
- Fraktionierende Abtrennung von bei der Spektrometrie störenden Nukliden. So unterscheiden sich manche Alpha-Strahler in ihren α -Energien nicht oder nur sehr wenig. Eine messtechnische nuklidspezifische Erfassung ist daher nicht möglich.

eingesetzte Verfahren:

Mitfällung, Ionenaustausch, Chromatographie

3. Probenpräparation

- Überführen der Aktinidenfraktion in messbare Form für Alphaspektrometrie

eingesetztes Verfahren:

Elektrodeposition auf Edelstahlplättchen

In den Abbildungen 7.1 und 7.2 sind die Abläufe der angewandten Probenaufbereitung auf Thoriumnuklide bis zum Vorliegen eines Messpräparates dargestellt.



A. Probeneingang

1. Bestimmung des Probenvolumens

Eventuell Rückstellprobe
(1/2 Gesamtvolumen)

B. Ca-Phosphatfällung

1. Ansäuern der Probe mit /1/ (10 % der Probenmenge)
2. Zugabe von 1 ml /2/
3. Zugabe des Tracers /3/
4. Erhitzen auf $\geq 80^\circ$ (mind. 3 h)
5. Probe 1 h abkühlen lassen
6. Zugabe von 5 ml /4/, Rühren
7. Unter Rühren Zugabe von /5/ bis Fällung eintritt
8. Niederschlag absetzen lassen
9. Überstand dekantieren
10. Rückstand zentrifugieren und in /1/ lösen
11. Mehrmals mit /1/ und /6/ abrauchen

- /1/ HNO₃, conc.
- /2/ 50 mg Ca(NO₃)₂/ ml
- /3/ 64,46 mBq Th 229
- /4/ 300 mg (NH₄)₂HPO₄/ ml
- /5/ NH₄OH, conc.
- /6/ H₂O₂, conc.

Überstand aufbewahren

Rückstand in 10 ml /7/ aufnehmen
(Probelösung)

C. Säulenchromatographie

1. Vorbereiten der Chromatographiesäule
 - Befüllen der Säule mit /8/ (0,7 g in Glassäule, 10 mm Durchmesser)
 - Überschichten mit Seesand
 - Konditionieren mit 10 ml /9/
 - Konditionieren mit 20 ml /10/

- /7/ 0,5 M Al(NO₃)₃ in 2 M HNO₃
- /8/ Tru-Spec, 100-150 μ m (Fa. Eichrom)
- /9/ 0,1 M NH₄HC₂O₄
- /10/ 2 M HNO₃
- /11/ 1 M HNO₃

1. Aufgabe der Probelösung
2. Nachspülen mit 5 ml /7/
3. Spülen mit 2 x 5 ml /11/
4. Elution mit 25 ml /9/

D. Elektrodeposition

1. Eindampfen des Eluats bis fast zur Trockene
2. Zugabe von 0,4 ml /12/
3. Erhitzen bis zur Bildung weißen Nebels, Abkühlen lassen
4. Zugabe von 15 ml /13/
5. Einstellen auf pH 2-3 mit /14/ und /15/
6. Elektrodeposition auf Edelstahlplättchen (3 h, 1000 mA)

- /12/ H₂SO₄, conc.
- /13/ H₂O, dest.
- /14/ NH₄OH, 25 %
- /15/ H₂SO₄, 5 %

Abbildung 7.1: Probenaufbereitung der 24h - Urinproben



A. Probeneingang

1. Entfernen der äußeren Verpackung
2. Bestimmung der Feuchtemasse

B. Veraschung

1. /1/ in Porzellanschale in 1 ml /2/ geben, Probe in Porzellanschale
2. Veraschen der Probe (12 h bei 500 °C)

- /1/ 64,46 mBq Th 229
/2/ KCl-Lösung, 1 %

C. Aufschluß

1. je 3 g Probenasche mit 15 ml /3/ versetzen, in Aufschlußbehälter geben
2. Mikrowellenaufschluß (30 min, 200 °C, ca. 5-15 bar)
3. Zentrifugieren des Aufschlusses
4. Überstand in Becherglas geben
5. Rückstand in 5 ml /4/ lösen, nochmals zentrifugieren
6. Überstand in Becherglas geben (Probe)
7. Probe 2-3 x auf Sandbad mit /3/ und /5/ abrauchen; bis fast zur Trockene

Eventuell Rückstellprobe
(1/2 Aschemasse)

- /3/ HNO₃, conc.
/4/ 8 M HNO₃
/5/ H₂O₂, conc.
/6/ 0,5 M Al(NO₃)₃
2 M HNO₃

D. Säulenchromatographie

1. Vorbereiten der 1.Chromatographiesäule
(wie Konditionierung bei Urinprobe)

- /7/ TEVA-Spec, 100-150 µm
(Fa.Eichrom)
/8/ 2 M HNO₃

2. Vorbereiten der 2.Chromatographiesäule
 - Befüllen der Säule mit /7/ (0,7 g in Glassäule, 10 mm Durchmesser)
 - Überschichten mit Seesand
 - Konditionieren mit 10 ml /8/

1. Aufgabe der Probelösung auf 1.Säule
2. Nachspülen mit 5 ml /6/
3. Spülen mit 2x5 ml /9/
4. Elution mit 10 ml /10/ und 20 ml /11/
5. Zugabe von 10 ml /12/ zum Eluat
6. 2-3 x Abrauchen des Eluats mit /3/ und /5/ bis fast zur Trockene
7. Aufnehmen des Rückstands in 10 ml /8/

- /9/ 2 M HNO₃ /
0,05 M (NH₄)₂C₂O₄ /
0,02 M HF
/10/ 0,025 M HNO₃
/11/ 0,1 M NH₄HC₂O₄
/12/ 0,5 M Al(NO₃)₃ in H₂O
/13/ 1 M HNO₃
/14/ 8 M HCl
/15/ 0,5M HCl

1. Aufgabe der Probelösung auf 2.Säule
2. Nachspülen mit 5 ml /6/
3. Spülen mit 2x5 ml /13/
4. Elution mit 20 ml /14/ und 20 ml /15/

D. Elektrodeposition (entsprechend Urinprobe)

Abbildung 7.2: Probenaufbereitung der 24h - Stuhlproben



8 Das WIG-Schweißverfahren

8.1 Allgemeines

Begibt man sich auf die Suche nach den Anfängen der Schweißtechnik, so wird man überrascht sein. Bereits im Jahre 2000 vor Christus gelang es den Indern, Eisen zu schmelzen und im Feuer zu schweißen. Diese Art der Metallbearbeitung, auch Feuerschweißen genannt, war die erste Stufe in der Entwicklung dieses vielseitigen Fertigungsverfahrens.

Die Vorläufer der heutigen modernen Schweißtechnik gehen alle auf das Ende des vorigen Jahrhunderts zurück. Sie sind somit knapp 100 Jahre alt. Das WIG-Schweißverfahren wurde 1936 in den USA eingeführt und wurde erst nach dem 2. Weltkrieg in Deutschland bekannt.

8.2 Beschreibung des WIG-Schweißverfahrens

Versucht man sich in der Vielfalt der Schweißverfahren zurechtzufinden, stößt man auf die DIN 1910, die nach Zweck (Verbindungs- und Auftragsschweißen) und Ablauf des Schweißverfahrens (Press- und Schmelzschweißen) unterscheidet (DIN 74).

Der vorwiegende Anteil der Schmelzschweißverfahren, so auch das WIG-Schweißverfahren, benutzt einen elektrischen Lichtbogen als Energiequelle (Gasentladung) und Werkzeug. Der Lichtbogen brennt dabei frei zwischen Elektrode und Werkstück. Er ist der bewegliche, stromdurchflossene Teil des Schweiß-Stromkreises.

Das WIG-Schweißverfahren ist eine Sonderform des Lichtbogenschweißens. Dabei wird der Schweißbereich (Elektrode / Schmelzbad) durch eigens zugeführtes Schutzgas (meist Argon) vor dem Zutritt von Luft geschützt. Als Arbeitselektrode dient eine meist zylindrische Elektrode aus Wolfram. Diese Elektrode ist Stromleiter und Lichtbogenträger zugleich. Sie wird während des Schweißvorgangs nur wenig abgenutzt und daher auch als Dauerelektrode bezeichnet.

Wolfram ist nicht zuletzt aufgrund seiner extrem hohen Schmelztemperatur (3390 °C) ideal für dieses Schweißverfahren geeignet.

Beim WIG-Schweißen kommt sowohl Wechsel- als auch Gleichstrom zur Anwendung.

8.3 Thorierte Wolframelektroden

Dauerelektroden für das WIG-Schweißen sind in den verschiedensten Durchmessern, Bauformen und chemischen Zusammensetzungen erhältlich.

Neben Elektroden, die aus reinem Wolfram bestehen, werden auch solche verwendet, denen in unterschiedlichen Prozentsätzen oxidische Zusätze zur Verbesserung der Eigenschaften beigemischt werden. In Gebrauch sind Dauerelektroden mit Zusätzen verschiedener Oxide wie Zirkondioxid (ZrO_2), Lanthandioxid (LaO_2), Cerdioxid (CeO_2) und Thoriumdioxid (ThO_2).

Diese Oxidzusätze bewirken in erster Linie eine Verringerung der Elektronenaustrittsarbeit und eine damit verbundene erhöhte Elektronenemission. Resultierend sind bessere Zündigenschaften, ein stabilerer Lichtbogen, eine längere Standzeit der Elektrode und eine höhere Strombelastbarkeit. Betrachtet man sich die Auswahlkriterien, die für den Kauf von Schweißelektroden ausschlaggebend sind, erhält man folgendes Ergebnis (Abbildung 8.1).

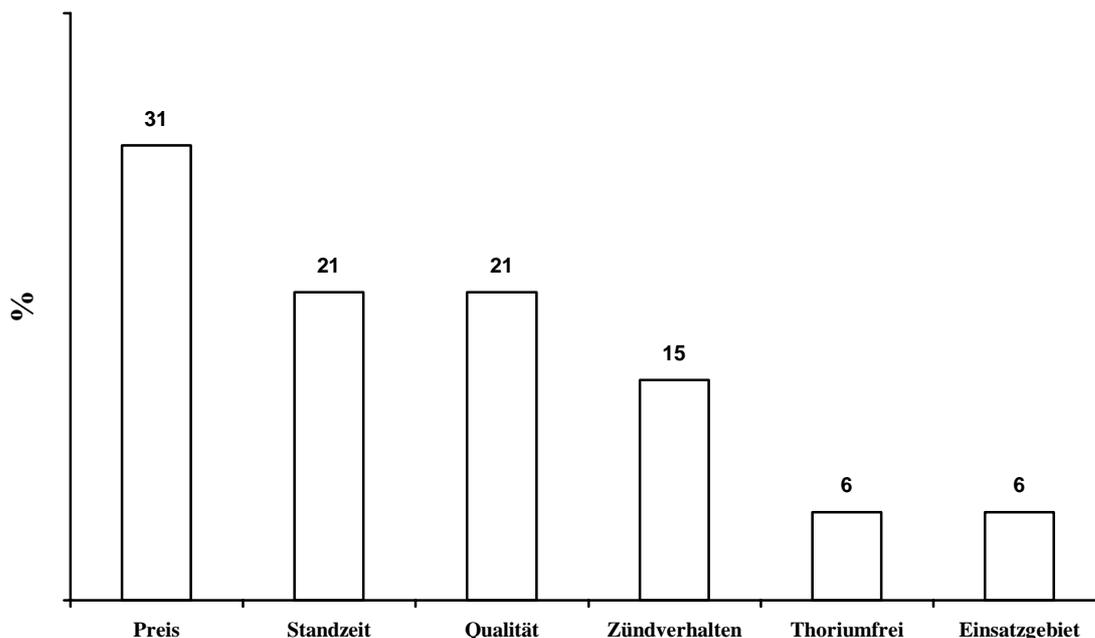


Abbildung 8.1: Kriterien zum Kauf von bestimmten Wolframelektroden (Prau 94)

Von den verschiedenen klassifizierten thorierten Wolframelektroden werden vorwiegend Stabelektroden mit den Bezeichnungen WT20 und WT40 verwendet. Die Bezeichnungen der Elektroden geben Aufschluss über den Gehalt an Thoriumdioxid (WT20: 1,70 - 2,20 %; WT40: 3,80-4,20 %).

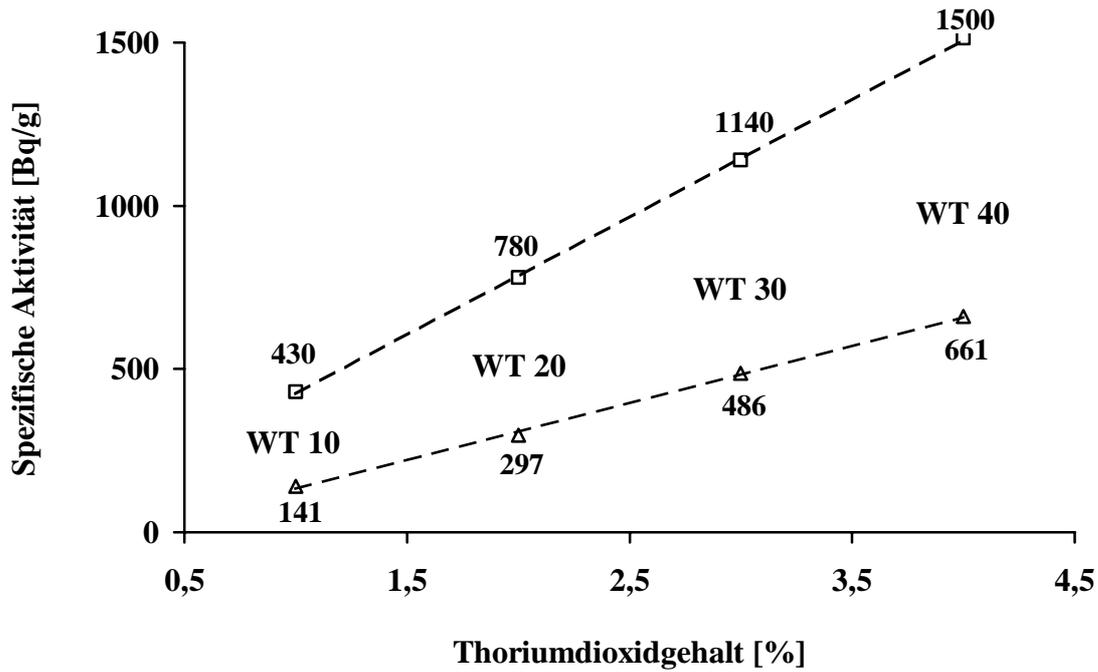


Abbildung 8.2: Spezifische Gesamtaktivität der Nuklide der Th-Reihe thorierter Elektroden unter Berücksichtigung der Th-Abtrennzeiten (Rei 93)

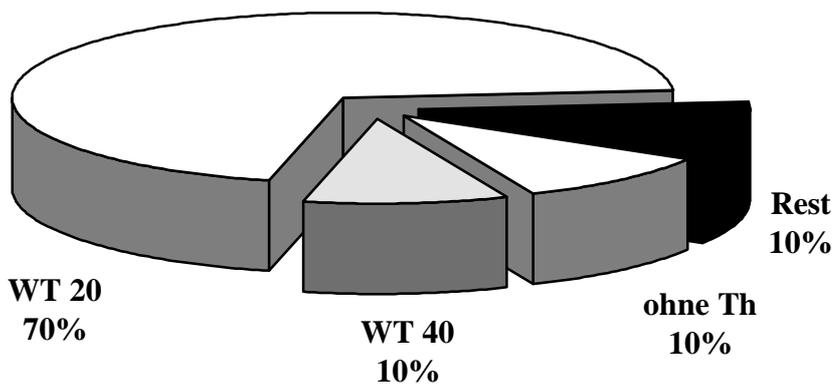


Abbildung 8.3: Abschätzung der anteilmäßigen Verbrauchszahlen für die Bundesrepublik - 1993 (Rei 93)



8.4 Einsatzfelder des WIG-Schweißens

Früher ging man davon aus, dass das WIG-Schweißen nur für Sonderaufgaben und besonders hochwertige Werkstoffe eingesetzt werden würde. Heutzutage wird es bei Stählen, allen Nichteisenmetallen und vor allem bei Leichtmetallen angewandt.

Haupteinsatzgebiete sind der Rohrleitungsbau, der Behälter- und Apparatebau und der Dünnblechbereich (ZVEE 96). Industriezweige in denen das WIG-Schweißen weit verbreitet ist, sind infolge dessen die Lebensmittelindustrie, die Luft- und Raumfahrttechnik und die chemische Industrie.

Die im vorliegenden Vorhaben untersuchten Schweißer sind in den Bereichen Tankbau für die chemische Industrie, Rohrleitungsbau, Apparate- und Behälterbau und industrielle Werkstätte beschäftigt.

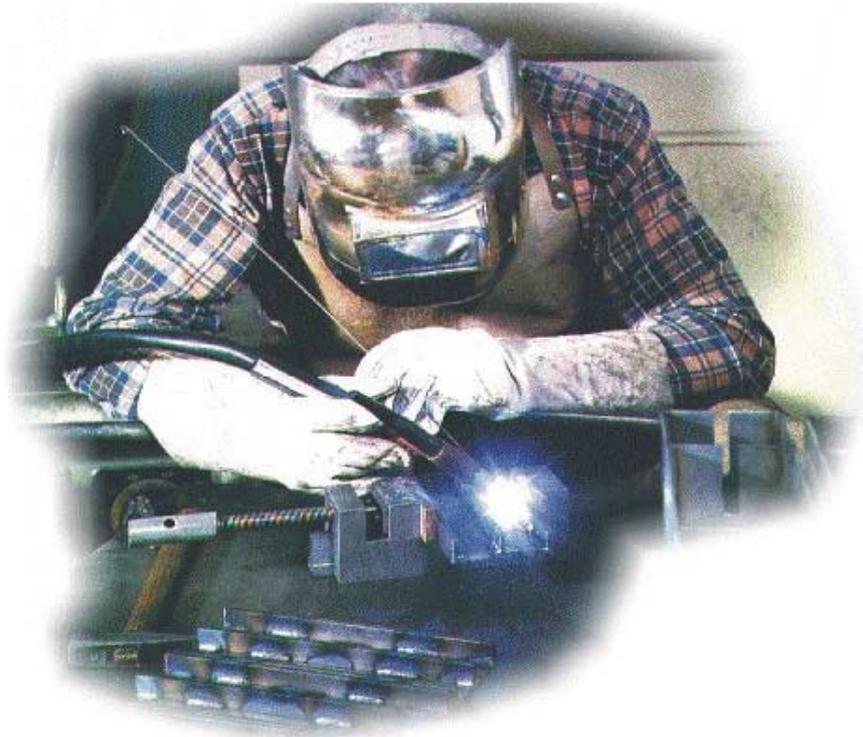
8.5 Strahlenexposition beim WIG-Schweißen

Bei der Verwendung thoriertes Wolframelektroden ergeben sich die verschiedensten Expositionspfade im beruflichen und im privaten Bereich.

Bei den Berechnungen werden externe Expositionen, die während der Lagerung, dem Transport und der Beseitigung thoriertes Elektroden entstehen und Anwendungen im Privatbereich nicht berücksichtigt.

Die Probanden, die am Untersuchungsvorhaben teilgenommen haben, sind bei ihrer Arbeit insbesondere folgenden Formen der Strahlenexposition ausgesetzt:

1. Inkorporation von Schweißrauch während der Schweiß Tätigkeit



- 2. Inkorporation von Schleifstaub beim Anschleifen der Elektroden**
- 3. Ungünstige Belüftungsverhältnisse, z.B. Schweißen im Inneren eines Behälters, erhöhen teilweise das Inkorporationsrisiko**

8.6 Untersuchte Personengruppe

8.6.1 Auswahl möglicher Teilnehmer

Ein wesentliches Ziel des Untersuchungsvorhabens war eine verlässliche Aussage über Höhe einer beim WIG-Schweißen möglichen inneren Strahlenexposition. Neben einer ausreichenden Anzahl von untersuchten Personen mussten daher Mindestanforderungen an die Arbeitsintensität und an das Arbeitsumfeld der Probanden gestellt werden. Die niedrigen Ausscheidungsraten von Thorium über Urin (ICRP 54) nach kontinuierlicher Inhalation und die mess-



technischen Nachweisgrenzen der Alpha-Spektrometrie, waren Gründe für die bevorzugte Auswahl vermeintlich stark exponierter WIG- Schweißer. Zur Einschätzung der Arbeitsbedingungen hatten die Teilnehmer einen umfangreichen Fragebogen auszufüllen.

8.6.2 Auswahl der Probanden

Unabdingbare Voraussetzung war die Akzeptanz beim relevanten Personenkreis. Nötig war dabei, neben dem Interesse der Betriebsführung, die verlässliche Mitarbeit des jeweiligen Schweißers bei der 24-Stunden-Probenahme und beim sorgfältigen Ausfüllen des Fragebogens. Erste Ansprechpartner innerhalb der Unternehmen waren Sicherheitsfachkräfte, Betriebsärzte oder Schweißfachingenieure.

Begonnen wurde die Suche nach Probanden in Oberfranken. Der Vorteil der räumlichen Nähe und der erhöhten Akzeptanz beim Ansprechpartner sollte dabei ausgenutzt werden. Nur wenige Firmen im engeren Umkreis des LfU Nordbayern konnten ausfindig gemacht werden, die Schweißer beschäftigen, welche seit langem kontinuierlich mit thorierten Elektroden arbeiten. Als gute Ansprechpartner erwiesen sich Gewerbeaufsichtsämter in Bayern, die aufgrund ihrer Verbindungen und der Kenntnisse vor Ort Firmen nennen konnten, die thorierte Elektroden in ihrer Fertigung einsetzen. Bei der Suche nach Unternehmen in Bayern fiel auf, dass bei vielen Firmen vor ca. 3-4 Jahren in der Fertigung auf thoriumfreie Elektroden umgestellt wurde. Diese Firmen setzen nun in der Regel Cer- und Lanthanelektroden ein.

Nach einer ersten Sichtung lagen Adressen von ca. 50 Firmen in Bayern vor, die thorierte Elektroden einsetzen, bzw. früher mit thorierten Elektroden gearbeitet haben. Eventuelles Interesse an einer Teilnahme am Untersuchungsvorhaben wurde telefonisch oder schriftlich (bei vorhandenem Ansprechpartner) abgeklärt. Die Firmen erhielten, neben dem Anschreiben mit ausführlicher Projektbeschreibung, ein Informationsblatt über Thorium, einen vorgefertigten Kurzantwortbogen und eine Kopie des vom StMLU herausgegebenen Berichtes. Viele Firmen zeigten kein Interesse an einer Teilnahme.

8.7 Organisation des Probenversandes

Waren in Frage kommende Unternehmen und deren Mitarbeiter zur Zusammenarbeit bereit, wurden ihnen die entsprechende Anzahl von Probenbehältern und Fragebögen zugesandt. Als



gute Lösung erwies sich die Verwendung von an der Meßstelle vorhandenen Transportbehältern und das persönliche Abholen der Proben in der Firma, da man sich hierbei bereits ein genaues Bild des Arbeitsumfeldes machen und offen gebliebene Fragen klären konnte. Von den Probanden wurde das persönliche Erscheinen vor Ort als besonders wichtig empfunden. Sämtliche Daten wurden vertraulich behandelt. Das LfU erhielt keine Namen der teilnehmenden Schweißer. Jede Probe erhielt eine Nummer, die lediglich der Ansprechpartner im Unternehmen dem jeweiligen Mitarbeiter zuordnen konnte.

8.8 Arbeitsumfeld der Probanden

Jeder Teilnehmer am Untersuchungsvorhaben hatte einen mehrseitigen Fragebogen auszufüllen. Die Fragestellungen betrafen die bisherige Arbeitsdauer, die Arbeitsintensität und die Arbeitsbedingungen beim Schweißen mit thorierten Wolframelektroden.

Die verschiedenen Fragen wurden in Anlehnung an den Bericht, "Strahlenexposition beim berufsbedingten WIG-Schweißen mit thorierten Wolframelektroden", ausgewählt (Rei 93). Bei der Auswertung der dort beschriebenen Atemluftuntersuchungen wird deutlich, welche Faktoren die Höhe der Strahlenexposition beeinflussen. Kenntnisse dieser Rahmenbedingungen sind wichtig für die Ermittlung der Höhe der Strahlenexposition des Schweißers.

Zu folgenden Punkten wurden den Probanden Fragen vorgelegt:

1. Tätigkeit
→ Einfluss auf Art und Höhe der Inkorporation
2. Dauerexposition
→ Die Ausscheidungsrate über den Urin ist abhängig von der Dauer der kontinuierlichen Zufuhr
3. Schweißintensität
→ Die Ausscheidungsrate über den Urin ist abhängig von der Dauer der täglichen und kontinuierlichen Zufuhr
4. Verwendung thoriertes Elektroden
→ Strahlenexposition nur bei der Verwendung thoriertes Elektroden möglich



5. Elektrodentyp der verwendeten Elektroden (Thoriumgehalt)
→ Der Thoriumgehalt des Schweißrauches ist abhängig vom Thoriumgehalt der verwendeten Elektrode
6. Stromart (Wechselstrom, Gleichstrom)
→ Der Thoriumgehalt des Schweißrauches ist abhängig von der Stromart
7. Absaugung
→ Thoriumhaltiger Schweißrauch und Schleifstaub werden bei entsprechender Absaugung weitgehend aus dem Atembereich des Schweißers entfernt
8. Anschleifen der Elektroden
→ Schnelles Freisetzen grosser Mengen thorierten Wolframs
9. Letztes Arbeiten mit thorierten Elektroden
→ Rückgang der Ausscheidungsrate nach längeren Arbeitspausen (ICRP 54)
10. Bemerkungen
→ Auffallende individuelle Besonderheiten am Arbeitsplatz und im Arbeitsverhalten

Fast alle Teilnehmer haben die Fragen vollständig und ausführlich beantwortet.

In den folgenden drei Tabellen sind die Antworten der Probanden zusammengefasst.

| Probe | ① | ② | ③ | ④ | ⑤ | ⑥ | ⑦ | ⑧ |
|-------|------|------|------|------|----|------|---|------|
| 96001 | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | 15 | n.b. | 5 | 8 |
| 96003 | JA | - | - | - | 9 | NEIN | 5 | 8 |
| 96004 | - | - | - | JA | 8 | NEIN | 3 | 8 |
| 96005 | JA | - | - | - | 8 | NEIN | 2 | 8 |
| 96007 | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | 30 | n.b. | 5 | 8 |
| 96008 | JA | - | - | - | 16 | JA | 5 | 3 |
| 96009 | JA | - | - | - | 18 | NEIN | 5 | 3 |
| 96010 | JA | - | - | - | 10 | NEIN | 5 | 4 |
| 96011 | JA | - | - | - | 27 | NEIN | 5 | 4 |
| 96012 | - | - | JA | - | 10 | NEIN | 5 | 3 |
| 96013 | JA | - | - | - | 5 | NEIN | 5 | 6 |
| 96014 | JA | - | - | - | 27 | NEIN | 5 | 4 |
| 96015 | JA | - | - | - | 6 | NEIN | 5 | 5 |
| 96016 | JA | - | - | - | 22 | NEIN | 5 | 4 |
| 96017 | JA | - | - | - | 22 | NEIN | 5 | 3 |
| 96018 | JA | - | - | - | 27 | NEIN | 5 | 5 |
| 96022 | - | - | JA | - | 11 | NEIN | 5 | 2 |
| 96023 | - | - | JA | - | 5 | NEIN | 5 | 2 |
| 96024 | JA | - | - | - | 9 | JA | 5 | 6 |
| 96025 | JA | - | - | - | 9 | JA | 5 | 4 |
| 96026 | JA | - | - | - | 16 | NEIN | 5 | 4 |
| 96030 | - | - | JA | - | 22 | NEIN | 5 | 3,5 |
| 96031 | JA | - | - | - | 20 | NEIN | 5 | 7,5 |
| 96032 | JA | - | - | - | 26 | JA | 5 | 7 |
| 96035 | JA | - | - | - | 12 | NEIN | 4 | 3 |
| 96036 | JA | - | - | - | 25 | NEIN | 5 | n.b. |
| 96037 | JA | - | - | - | 20 | NEIN | 5 | 8-10 |
| 96050 | JA | - | - | - | 10 | NEIN | 5 | 3 |
| 96051 | JA | - | - | - | 16 | NEIN | 5 | 3 |

n.b.: nicht beantwortet

Tabelle 8.1: Übersicht über die Fragebögen: Tätigkeit des Probanden und Intensität seiner Schweißtätigkeit während der Beschäftigungsdauer

| Probe | ① | ② | ③ | ④ | ⑤ | ⑥ | ⑦ | ⑧ | ⑨ | ⑩ | ⑨⑩ |
|-------|------|------|------|------|----|----|------|------|------|------|------|
| 96001 | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | JA | JA | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. |
| 96003 | JA | - | - | - | JA | JA | JA | - | - | - | - |
| 96004 | JA | - | - | - | JA | JA | - | - | JA | - | n.b. |
| 96005 | JA | - | - | - | JA | JA | JA | - | - | - | - |
| 96007 | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | JA | JA | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. | n.b. |
| 96008 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96009 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96010 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96011 | JA | - | - | - | - | JA | - | - | JA | - | 9:1 |
| 96012 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96013 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96014 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96015 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96016 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96017 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96018 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96022 | - | JA | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96023 | - | JA | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96024 | JA | - | - | - | - | JA | - | - | JA | - | 9:1 |
| 96025 | JA | - | - | - | - | JA | - | - | JA | - | 9:1 |
| 96026 | JA | - | - | - | - | JA | - | - | JA | - | 9:1 |
| 96030 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96031 | JA | - | - | - | JA | - | - | - | JA | - | n.b. |
| 96032 | JA | - | - | - | - | JA | - | JA | - | - | - |
| 96035 | JA | - | - | - | JA | - | - | - | JA | - | n.b. |
| 96036 | JA | - | - | - | JA | - | - | - | JA | - | n.b. |
| 96037 | JA | - | - | - | JA | - | - | - | JA | - | n.b. |
| 96050 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |
| 96051 | JA | - | - | - | - | JA | JA | - | - | - | - |

n.b.: nicht beantwortet

Tabelle 8.2: Übersicht über die Fragebögen: Thorierung der verwendeten Elektroden und bevorzugte Stromart des Probanden während seiner Beschäftigungsdauer

| Probe | ① | ② | ③ | ④ | ⑤ | ⑥ | ⑦ | ⑧ |
|-------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 96001 | n.b. |
| 96003 | JA | - | - | - | JA | 6 | JA | - |
| 96004 | JA | - | - | - | JA | 5 | JA | - |
| 96005 | JA | - | - | - | JA | 5 | JA | - |
| 96007 | n.b. |
| 96008 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96009 | JA | - | - | - | JA | 3 | JA | - |
| 96010 | JA | - | - | - | JA | 3 | JA | - |
| 96011 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96012 | JA | - | - | - | JA | 6 | JA | - |
| 96013 | JA | - | - | - | JA | 5 | JA | - |
| 96014 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96015 | JA | - | - | - | JA | 6 | JA | - |
| 96016 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96017 | JA | - | - | - | JA | 5 | JA | - |
| 96018 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96022 | JA | - | - | - | JA | 10 | - | JA |
| 96023 | JA | - | - | - | JA | 10 | n.b. | n.b. |
| 96024 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | JA |
| 96025 | JA | - | - | - | JA | 8 | JA | JA |
| 96026 | JA | - | - | - | JA | 10 | n.b. | n.b. |
| 96030 | - | - | JA | - | JA | 5 | JA | - |
| 96031 | - | - | JA | - | JA | 5 | JA | JA |
| 96032 | JA | - | JA | n.b. | JA | 5 | JA | - |
| 96035 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96036 | JA | JA | JA | - | JA | 5 | JA | - |
| 96037 | JA | JA | JA | - | JA | 3-5 | JA | - |
| 96050 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |
| 96051 | JA | - | - | - | JA | 10 | JA | - |

n.b.: nicht beantwortet

Tabelle 8.3: Übersicht über die Fragebögen: Technische Absaugung während des Schweißvorgangs und Anschleifen thorierter Elektroden



8.9 Einschätzung der Strahlenexposition

Bei den untersuchten Schweißern handelt es sich vorwiegend um langjährige WIG-Handscheißer mit hoher Schweißintensität. Die Mittel der Lebensarbeitszeit, der wöchentlichen und täglichen Schweißzeit liegen bei 16 a, 4,8 d/w und 5,1 h/d.

Die Probanden haben bis zur Probenahme bevorzugt mit thorierten Elektroden des Typs WT 20 oder WT 40 gearbeitet. Dies entspricht dem Normalfall in der industriellen Fertigung.

Dominierend bei der verwendeten Stromart ist Gleichstrom. Wechselstrom wird von den untersuchten Arbeitern mit einem Anteil von 10 - 20 % angewendet. Auch dies ist Abbild realistischere Arbeitsbedingungen, bei denen man von einem 74 %-igen Anteil des Gleichstromschweißens ausgeht (Prau 94). Nur zwei der Schweißern setzen während ihrer Arbeit eine technische Absaugung ein, vier der Arbeiter benutzen diese auch beim Anschleifen der Elektroden. Die Häufigkeit des Anschleifens ist mit ca. 7 Anschliffen pro Tag und Proband recht gering, bedingt sich jedoch aus der langjährigen beruflichen Erfahrung der Probanden (Unerfahrene WIG-Schweißern müssen häufiger anschleifen).

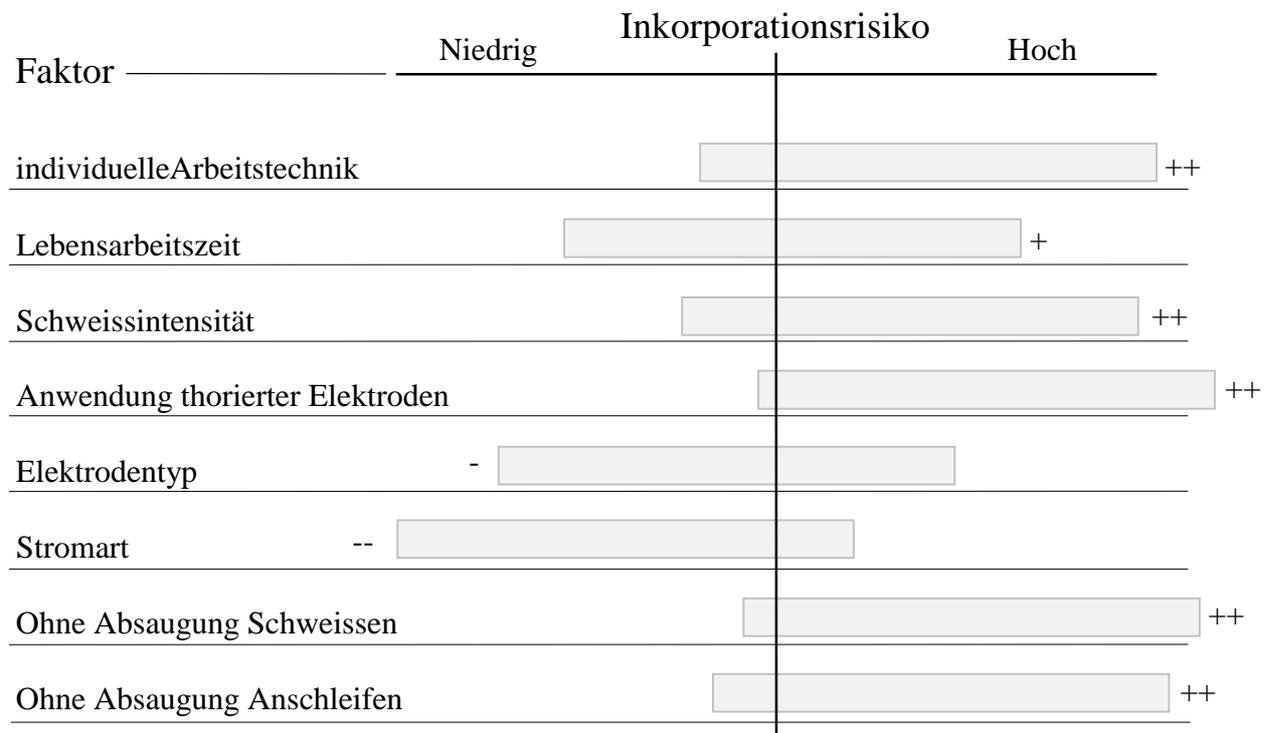


Abbildung 8.4: Einschätzung des Autors über das Inkorporationsrisiko durch Faktoren aus der Arbeitsumgebung der Schweißern

In Abbildung 8.4 sind die wichtigsten Faktoren dargestellt die sich auf die innere Strahlenexposition auswirken. Ausgehend von einer minimalen und maximalen Beeinflussung wird eine Einschätzung der Intensität der Exposition vorgenommen, ohne die Faktoren

Einschätzung der Intensität der Exposition vorgenommen, ohne die Faktoren gegeneinander zu wichten. Dabei kommt man zum Schluss, dass es sich bei dem untersuchten Kollektiv um WIG-Schweißer handelt, deren Exposition über einem angenommenen Belastungsmittel liegt. Unberücksichtigt bleiben muss das individuelle Arbeitsverhalten des Schweißers, welches sicherlich einen nicht unwesentlichen Einfluss auf eine mögliche Inkorporation von Thorium hat. Die externe Strahlenexposition durch den Umgang mit thorierten Elektroden wird bei dieser Einschätzung nicht berücksichtigt (siehe hierzu Rei 93).

8.10. Urinanalysen

8.10.1 Messergebnisse

In Tabelle 8.4 sind die Th 232-Messwerte der analysierten Urinproben von WIG-Schweißern aufgeführt.

| Probennummer | Messwert [mBq/d] | Fehler [%] | Nachweisgrenze [mBq/d] | Fehler [%] |
|--------------|---------------------|---------------|---------------------------|---------------|
| 96001_1 | - | - | 0,85 | 45 |
| ⇒96001_2 | 0,58 | 50 | - | - |
| 96003_1 | 0,36 | 312 | - | - |
| ⇒ 96003_2 | n.i. | - | 0,42 | - |
| 96004_1 | 0,32 | 22 | - | - |
| ⇒ 96004_2 | 0,40 | 43 | - | - |
| ⇒ 96005_1 | 0,22 | 27 | - | - |
| 96005_2 | n.i. | - | 0,75 | 10 |
| ⇒ 96007_1 | 0,54 | 16 | - | - |
| 96007_2 | n.i. | - | 0,21 | 27 |
| 96008_1 | 0,37 | 37 | - | - |
| ⇒ 96008_2 | 0,59 | 37 | - | - |
| ⇒ 96009_1 | 0,33 | - | - | - |
| 96009_2 | n.a. | - | - | - |
| 96010_1 | 0,21 | 40 | - | - |
| ⇒ 96010_2 | 0,42 | 70 | - | - |
| 96011_1 | 0,16 | 58 | - | - |
| ⇒ 96011_2 | 0,47 | 70 | - | - |
| 96012_1 | n.i. | - | 0,19 | 34 |
| ⇒ 96012_2 | 0,42 | 56 | - | - |
| ⇒ 96013_1 | 0,43 | 90 | - | - |
| 96013_2 | 0,37 | 63 | - | - |
| ⇒ 96014_1 | 0,17 | - | - | - |
| 96014_2 | n.i. | - | 1,00 | 10 |

| | | | | |
|-----------|------|-----|------|-----|
| 96015_1 | n.i. | - | 0,26 | 26 |
| ⇒ 96015_2 | 0,52 | 26 | - | - |
| ⇒ 96016_1 | 0,45 | 49 | - | - |
| 96016_2 | 0,39 | 32 | - | - |
| 96017_1 | n.i. | - | 0,29 | 24 |
| ⇒ 96017_2 | 0,27 | 55 | - | - |
| ⇒ 96018_1 | 0,38 | 26 | - | - |
| 96018_2 | 0,36 | 138 | - | - |
| ⇒ 96022_1 | 0,54 | 60 | - | - |
| 96022_2 | n.i. | - | 0,47 | 41 |
| ⇒ 96023_1 | 0,44 | 23 | - | - |
| 96023_2 | 0,39 | 45 | - | - |
| 96024_1 | 0,39 | 24 | - | - |
| ⇒ 96024_2 | 0,41 | 45 | - | - |
| ⇒ 96025_1 | 0,44 | 28 | - | - |
| 96025_2 | 0,39 | 45 | - | - |
| ⇒ 96026_1 | n.i. | - | 0,20 | 113 |
| 96026_2 | n.i. | - | 0,83 | 19 |
| 96030_1 | 0,48 | 18 | - | - |
| ⇒ 96030_2 | 0,58 | 39 | - | - |
| 96031_1 | n.a. | - | - | - |
| ⇒ 96031_2 | 0,37 | 28 | - | - |
| 96032_1 | 0,10 | 32 | - | - |
| ⇒ 96032_2 | 0,12 | 126 | - | - |
| ⇒ 96035_1 | 0,25 | 75 | - | - |
| ⇒ 96036_1 | 0,48 | 18 | - | - |
| ⇒ 96037_1 | n.i. | - | 7,5 | 17 |
| ⇒ 96050_1 | 0,16 | 157 | - | - |
| ⇒ 96051_1 | 0,15 | 37 | - | - |

n.i.: nicht identifiziert n.a.: nicht auswertbar

⇒: Ergebnis für die Berechnung der Effektivdosis

Tabelle 8.4: Ergebnisse der Urinalysen

Alle Messergebnisse liegen über dem empfohlenen Wert der natürlichen Thoriumausscheidung von 24-Stunden-Urin von 0,1 mBq. Die Messwerte und deren Fehler schwanken in diesem Bereich je nach Auswertung (Fit). Bei den Messwerten ist sicherlich nicht der Absolutwert entscheidend sondern die Größenordnung der gemessenen Thoriumausscheidung und der Vergleich mit der Kontrollgruppe aus unbelasteten Personen.

8.10.2 Vergleich mit Kontrollgruppe

Bei der Auswertung der Urinalysen wurde auf die Ermittlung von Blindwerten verzichtet,

stattdessen wurden 24-Stunden-Urinproben von 17 Personen aus Oberfranken, die in ihrem bisherigen Arbeitsleben keinen Umgang mit thorierten Materialien hatten, gemessen und die Ergebnisse mit den Messergebnissen der exponierten Schweißer verglichen.

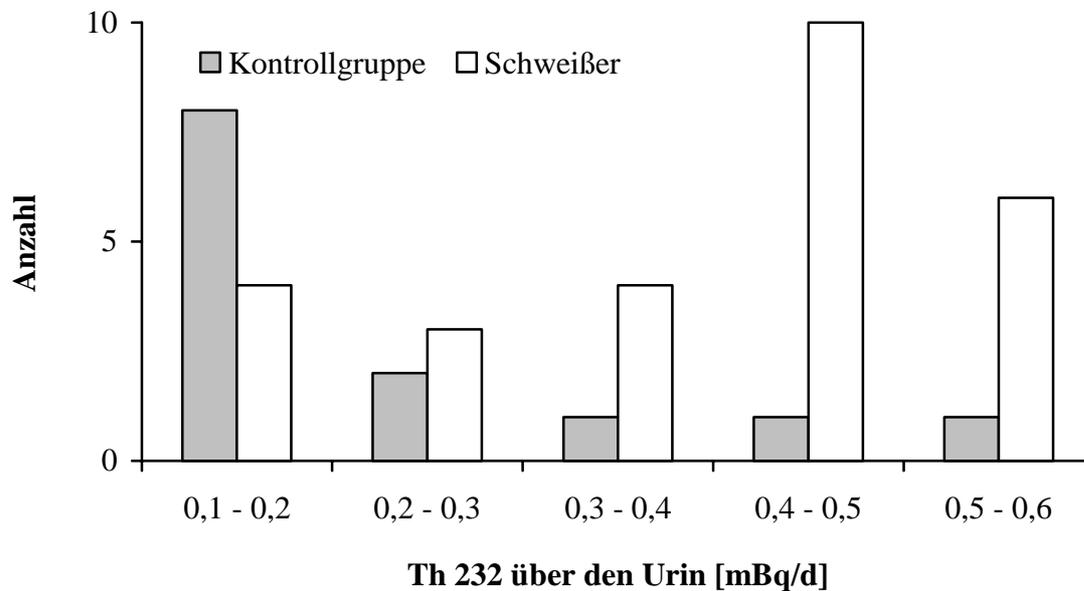


Abbildung 8.5: Messwerte und Nachweisgrenzen exponierter Schweißer und beruflich unbelasteter Personen aus Oberfranken

Abbildung 8.5 zeigt die im Mittel erhöhten Werte der Th 232 - Ausscheidung der Schweißer gegenüber beruflich nicht exponierten Personen aus Oberfranken.

8.10.3 Interpretation der Messwerte

Das Verfahren zur Interpretation der gemessenen Ausscheidungen beruht auf biokinetischen und dosimetrischen Modellen (ICRP 30, 54). Beiden Modellen liegen die anatomischen und metabolischen Daten des Referenzmenschens zugrunde (ICRP 23).

Zur Berechnung der Effektivdosis wurden die Dosisfaktoren für Thorium gemäß Bundesanzeiger 185a/89 (Bun 89) herangezogen.

Bei der Berechnung der Aktivitätszufuhr bei Inhalation aus gemessenen Urin Aktivitäten wurden u.a. folgende Parameter berücksichtigt:

1. Zeitraum und Kontinuität der Inhalation



- ⇒ personenabhängige Daten aus Fragebogen
- 2. Aktivitätsbezogener Median des aerodynamischen Aerosolpartikeldurchmessers (AMAD)
 - ⇒ angenommen: 1 μm , Standard gemäß GMBI 94
- 3. Chemische Verbindung des inkorporierten Nuklides, Retentionsklassen D,W,Y
 - ⇒ angenommen ThO_2 , d.h. Retentionsklasse Y, gemäß GMBI 94

Es wird von einem kontinuierlichen und gleichmäßigen Umgang mit thorierten Elektroden ausgegangen. Arbeitsfreie Wochenenden sowie kurze Berufsunterbrechungen bleiben unberücksichtigt. Dies vereinfacht die Berechnung ohne das Ergebnis wesentlich zu verfälschen.

8.10.4 Aktivitätszufuhr und Effektivdosis

Die Aktivitätszufuhr und die Effektivdosis wird mit Hilfe des Leitnuklides Th 232 und den zuvor genannten Parametern bestimmt. Bei der Berechnung der Gesamtzufuhr von Thorium geht man von einem angenommenen Aktivitätsverhältnis von Th 228 zu Th 232 von 1:1 aus. Elektrodenalter und die Aktivität von Th 230 haben keinen größenordnungsverändernden Einfluss auf die letztendlich resultierende Dosis. Die natürliche Thoriumausscheidung über Urin und der messtechnisch bedingte Blindwert ist in den Messwerten enthalten. Sie wird bei der Abschätzung der beruflichen Strahlenexposition nicht abgezogen.

Betrachtet man die Messwerte aus Tabelle 8.4, beträgt der Anteil der natürlichen Thoriumausscheidung (0,1 mBq/Tag) an der Thoriumausscheidung über 24-Stunden-Urin je nach Proband zwischen 17 % und 100 %. Es handelt sich somit um eine konservative Abschätzung der Strahlenexposition.

Um die Größenordnung der ermittelten Aktivitätszufuhren zu veranschaulichen, ist der Anteil am Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr (GJAZ) für Thorium in der natürlichen Zusammensetzung ($\text{Th}_{\text{nat.}}$) aufgeführt. Der GJAZ für $\text{Th}_{\text{nat.}}$ als ThO_2 beträgt nach StrlSchV, Anlage IV, Tabelle IV 1, Spalte 5, 100 Bq/Jahr (StrlSchV 89).

| Probenummer | Aktivitätszufuhr | | | Anteil am GJAZ | Effektive Dosis |
|---------------------|------------------|----------------|---------------------------|------------------------|----------------------------|
| | Th 232 [mBq/d] | Th 232. [Bq/a] | Th _{nat.} [Bq/a] | Th _{nat.} [%] | Th _{nat.} [mSv/a] |
| 96001 | 24 | 8,7 | 17,4 | 17,4 | 3,5 |
| 96003 | ≤ 25,2 | ≤ 9,2 | ≤ 18,4 | ≤ 18,4 | ≤ 3,7 |
| 96004 | 26,7 | 9,8 | 19,6 | 19,6 | 3,9 |
| 96005 | 19,7 | 5,4 | 10,8 | 10,8 | 2,1 |
| 96007 | ≤ 38 | ≤ 14 | ≤ 28 | ≤ 28 | ≤ 4,3 |
| 96008 | 14,8 | 5,7 | 11,4 | 11,4 | 2,3 |
| 96009 | 12,2 | 4,5 | 9,0 | 9,0 | 1,8 |
| 96010 | 12,1 | 4,5 | 9,0 | 9,0 | 1,8 |
| 96011 | 14,4 | 5,4 | 10,8 | 10,8 | 2,2 |
| 96012 | 22,9 | 9,2 | 18,2 | 18,2 | 3,7 |
| 96013 | 53,7 | 18,9 | 37,8 | 37,8 | 7,6 |
| 96014 | ≤ 20,2 | ≤ 7,6 | ≤ 15,2 | ≤ 15,2 | ≤ 3,1 |
| 96015 | ≤ 21,8 | ≤ 7,8 | ≤ 15,6 | ≤ 15,6 | ≤ 3,1 |
| 96016 | 15,5 | 9,8 | 19,6 | 19,6 | 3,9 |
| 96017 | 10,0 | 3,5 | 7,0 | 7,0 | 1,4 |
| 96018 | 11,7 | 6,6 | 13,2 | 13,2 | 2,7 |
| 96022 | 26,3 | 9,6 | 19,2 | 19,2 | 3,9 |
| 96023 | 49,0 | 18,0 | 36,0 | 36,0 | 7,2 |
| 96024 | 23,4 | 8,5 | 17,0 | 17,0 | 3,4 |
| 96025 | 26,4 | 9,6 | 19,2 | 19,2 | 3,9 |
| 96026 | ≤ 33,2 | ≤ 11,5 | ≤ 23,0 | ≤ 23,0 | ≤ 4,6 |
| 96030 | 19,8 | 3,6 | 7,2 | 7,2 | 4,5 |
| 96031 | 21,6 | 3,9 | 7,9 | 7,9 | 3,2 |
| 96032 | 4,7 | 0,9 | 1,7 | 1,7 | 0,7 |
| 96035 | 12,1 | 2,1 | 5,2 | 5,2 | 1,9 |
| 96036 | 16,9 | 6,2 | 12,4 | 12,4 | 2,2 |
| 96037 ¹⁾ | - | - | - | - | - |
| 96050 | 8,8 | 3,2 | 6,4 | 6,4 | 1,0 |
| 96051 | 6,0 | 2,2 | 4,4 | 4,4 | 0,7 |

¹⁾ Aufgrund der hohen Nachweisgrenze (schlechtes Messpräparat) wurde auf eine Berechnung der Aktivitätszufuhr verzichtet

Tabelle 8.5: Konservative Abschätzung von Aktivitätszufuhr und Effektivdosis anhand der Untersuchungsergebnisse der Urinproben aus Tabelle 7.4

8.11 Vergleich mit Literaturdaten

8.11.1 Raumlufuntersuchungen

Eine Möglichkeit zur Abschätzung der inneren Strahlenexposition durch Inhalation beim WIG-Schweißen sind Untersuchungen der Raumluf. Dabei werden die in der Raumluf enthaltenen thoriumhaltigen Partikel auf einem Filter gesammelt und die Aktivität der beaufschlagten Filter nuklidspezifisch bestimmt. Mit diesen Messwerten wird anschließend die Aktivitätskonzentration der Raumluf und die dem Probanden durch Inhalation zugeführte Aktivität im betrachteten Zeitraum bestimmt. Unterschiedliche Arbeitsbedingungen der Probanden berücksichtigt man durch eine personenbezogene Probenahme.

Umfangreiche personenbezogene Atemluftuntersuchungen beim WIG-Schweißen mit thorierten Elektroden hat die Berufsgenossenschaft der Feinmechanik und Elektrotechnik in Köln durchgeführt und veröffentlicht (BG 97). Dabei wurden in 26 Betrieben unter den verschiedensten Arbeitsbedingungen personenbezogene Probenahmen beim Schweißen und Anschleifen durchgeführt.

| | JAZ normiert ¹⁾ | | | Versuchsparameter |
|-----------|----------------------------|---------------------|------------------|--|
| | Schweißen [Bq/a] | Schleifen [Bq/a] | Gesamt [Bq/a] | |
| Messung A | 56,12 | 34,4 | 90,54 | Ohne Absaugung beim Schweißen und Anschliff, Wechselstrom |
| Messung B | 0,47 | 0,13 | 0,60 | Absaugung beim Schweißen und Anschliff, Gleichstrom |
| Messung C | 2,3 | 4,0 | 6,2 | Ohne Absaugung beim Schweißen und Anschliff, Gleichstrom 44 A |
| Messung D | ≤ 0,42 | 1,44 | 1,8 | Ohne Absaugung beim Schweißen und Anschliff, Gleichstrom 180 A |
| Messung E | 438 | - | 438 | Ohne Absaugung beim Schweißen, Wechselstrom |

¹⁾ Normierung der Jahresaktivitätszufuhr (JAZ) für Th 232 auf vergleichbare Bedingungen; Expositionszeit: 2000 h/a, Verwendung von WT 40

Tabelle 8.6: Auszug einiger Ergebnisse von Raumlufuntersuchungen beim WIG-Schweißen mit thorierten Elektroden (BG 97)

Raumluftuntersuchungen wurden auch vom Technischen Überwachungsverein Bayern-Sachsen durchgeführt (Rei 93). Ermittelt wurden Aktivitätskonzentrationen dosisrelevanter Nuklide in der Atemluft. Sie bilden die Grundlage der berechneten Jahresaktivitätszufuhren (JAZ) in Tabelle 8.7.

| | JAZ normiert ¹⁾ | | Versuchsparameter |
|-----------|----------------------------|---------------------|---|
| | Schweißen [Bq/a] | Schleifen [Bq/a] | |
| Messung 1 | 341 | - | Ohne Absaugung beim Schweißen, Wechselstrom |
| Messung 2 | 146 | - | gleiche Bedingungen wie bei Probenahme 1 |
| Messung 3 | 113 | - | gleiche Bedingungen wie bei Probenahme 1 |
| Messung 4 | - | 40 | zehnmaliges Anschleifen pro Tag, ohne Absaugung |
| Messung 5 | - | 10 | zehnmaliges Anschleifen pro Tag, mit Absaugung |

¹⁾ Normierung der Jahresaktivitätszufuhr (Th 232) auf vergleichbare Bedingungen; Expositionszeit: 2000 h/a, Verwendung von WT 40

Tabelle 8.7: Berechnete Jahresaktivitätszufuhren aufgrund von Raumluftuntersuchungen beim WIG-Schweißen mit thorierten Elektroden (Rei 93)

Die berücksichtigten Versuchsparameter kennzeichnen nur zum Teil die Arbeitsbedingungen. Neben Schweißstrom, Schweißspannung und der individuellen Arbeitstechnik des Schweißers tragen sie zu den unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen in der Raumluft und damit zur Jahresaktivitätszufuhr bei.

Deutlich werden bei den aufgeführten Werten die Schwankungen unter den verschiedenen Versuchsbedingungen. Die Messwerte stellen nur Momentaufnahmen definierter Verhältnisse am Arbeitsplatz dar und sind daher für die Abschätzung der langjährigen Exposition eines WIG-Schweißers nur bedingt geeignet.

8.11.2 Direkte Ausscheidungsuntersuchungen

Von direkten Ausscheidungsuntersuchungen zur Ermittlung von Jahresaktivitätszufuhren beim WIG-Schweißen liegen nur sehr wenige Daten vor.

| Quelle | Th 232 [mBq/d] |
|---------------------------------|--|
| Mc Elearny et al. 1993 (McE 93) | bis 0,4 (88% der Schweißer unter 0,1 mBq/d) |
| Vorliegende Untersuchungen | 0,10- 0,59 |

Tabelle 8.8: Urinuntersuchungen (McE 93) und vorliegende Untersuchung

8.12 Ausscheidungsuntersuchung und Raumlufuntersuchung eines Schweißers

Bei einem der untersuchten Schweißer (Probennummer 96001) wurden sowohl eine personenbezogene Atemluftprobe als auch eine Ausscheidungsuntersuchung des Urins durchgeführt. Tabelle 8.9 zeigt die Ergebnisse im Vergleich.

| Probennummer | Ergebnisse einer Atemluftuntersuchung (Lud 96) | | | Ausscheidungsuntersuchung |
|--------------|--|----------------------------|----------------------|--------------------------------|
| | Anteil Schleifen [Bq/a] | Anteil Schweißen [Bq/a] | Gesamt JAZ [Bq/a] | Berechneter Wert JAZ [Bq/a] |
| 96001 | 49,2 | 30,2 | 79,4 | 8,7 |

Tabelle 8.9: Vergleich der Jahresaktivitätszufuhr für Th 232 zwischen personenbezogener Probenahme und nach einer Ausscheidungsuntersuchung über den Urin

Der auf Grundlage der Ausscheidungsuntersuchung berechnete JAZ liegt um eine Zehnerpotenz unter dem Wert, der nach der Atemluftuntersuchung zu erwarten wäre.

In Tabelle 8.10 wurden mit den Ergebnissen der Raumlufuntersuchungen aus Tabelle 8.6 Ausscheidungswerte über Urin für Th 232 berechnet. Grundlage für die Abschätzungen der Th 232-Ausscheidung über den Urin nach 5, 10, 20 und 30 Jahren kontinuierlicher Inhalation

sind die Schriften der ICRP 30 und ICRP 54. Danach sind bei mittleren Zufuhren von mehreren zehn Bq Th 232/a Messwerte im Urin von mehreren mBq Th 232/d zu erwarten.

| | JAZ normiert ¹⁾ ; Gesamt [Bq/a] für Th 232 | Berechnete Ausscheidung über den Urin [mBq/d] für Th 232, Retentionsklasse Y, Amad 1,0 (0,1) | | | |
|-----------|---|---|-------------|-------------|-------------|
| | | Expositionszeit [a] | | | |
| | | 5 | 10 | 20 | 30 |
| Messung A | 90,54 | 2,3 (5,0) | 4,5 (9,9) | 7,1 (15,9) | 8,9 (19,4) |
| Messung B | 0,60 | 0,02 (0,03) | 0,03 (0,07) | 0,05 (0,11) | 0,06 (0,13) |
| Messung C | 6,2 | 0,15 (0,34) | 0,31 (0,68) | 0,48 (1,08) | 0,59 (1,33) |
| Messung D | 1,8 | 0,05 (0,10) | 0,09 (0,21) | 0,14 (0,32) | 0,17 (0,39) |
| Messung E | 438 | 11,3 (24,0) | 21,8 (48,2) | 34,2 (76,8) | 41,5 (94,1) |

¹⁾ Normierung der Jahresaktivitätszufuhr (Th 232) auf vergleichbare Bedingungen;
Expositionszeit: 2000 h/a, Verwendung von WT 40

Tabelle 8.10: Berechnete Ausscheidungswerte auf Grundlage von Raumluftuntersuchungen (Tabelle 8.6)

8.13 Stuhlproben ausgewählter WIG-Schweißer

8.13.1 Arbeitsbedingungen

Fünf der untersuchten WIG-Schweißer waren neben den Ausscheidungsmessungen des Urins zur Abgabe einer 24h-Stuhlprobe bereit. Die 24h-Stuhlprobe wurde nach einer fünftägigen Arbeitswoche mit definierten Arbeitsbedingungen genommen. Diese sind in Tabelle 8.11 aufgeführt.



| Probe | Art | Schweißdauer [a] | Intensität [h/d] | Probenahme am ... |
|-------|-----------------------|------------------|--------------------------------|--------------------------|
| 96035 | mobil, ohne Absaugung | 12 | 3 (reine Schweißzeit) | 6. Tag |
| 96036 | mobil, ohne Absaugung | 25 | n.b. | 6. Tag |
| 96037 | mobil, ohne Absaugung | 20 | 8-10 | 6. Tag |
| 96050 | mobil, ohne Absaugung | 10 | 3 (reine Schweißzeit) | 6. Tag |
| 96051 | mobil, ohne Absaugung | 16 | 3 (reine Schweißzeit) | 6. Tag |
| Probe | Elektrodenart | Stromart | Periode des Anschliffens [1/d] | Absaugung beim Anschliff |
| 96035 | WT 40 | ≈ / = | 10 | Nein |
| 96036 | WT 30 | ≈ / = | 5 | Nein |
| 96037 | WT 30 | ≈ / = | 3-5 | Nein |
| 96050 | WT 20 | = | 10 | Nein |
| 96051 | WT 20 | = | 10 | Nein |

n.b.: nicht beantwortet

=: Gleichstrom ≈: Wechselstrom

Tabelle 8.11: Individuelle Arbeitsbedingungen von fünf ausgewählten Handschweißern während einer Arbeitswoche

8.13.2 Messergebnisse

| Th 228 | | | Th 230 | | |
|--------|------------------|------------|-------------------|------------------|------------|
| Probe | Messwert [mBq/d] | Fehler [%] | Probe | Messwert [mBq/d] | Fehler [%] |
| 96035 | 43,2 | 5,2 | 96035 | 7,8 | 11,1 |
| 96036 | 43,1 | 10,3 | 96036 | 14,3 | 8,8 |
| 96037 | 110 | 5,9 | 96037 | 25,4 | 5,3 |
| 96050 | 152,4 | 8,3 | 96050 | 24,4 | 9,1 |
| 96051 | 214,0 | 9,3 | 96051 | 4,2 | 12,0 |
| Th 232 | | | Th 228 und Th 232 | | |
| Probe | Messwert [mBq/d] | Fehler [%] | Probe | Th 228 / Th 232 | |
| 96035 | 5,5 | 13,0 | 96035 | 7,9 | |
| 96036 | 46,9 | 6,0 | 96036 | 0,9 | |
| 96037 | 53,7 | 5,5 | 96037 | 2,0 | |
| 96050 | 13,9 | 27,8 | 96050 | 11,0 | |
| 96051 | 5,5 | 21,8 | 96051 | 38,9 | |

Tabelle 8.12: Messergebnisse der Stuhlausscheidungsanalysen für Th 228, Th 230 und Th 232

Die Messergebnisse bei zwei Schweißern geben einen Hinweis auf die berufliche Inkorporation von Thorium. Für die Probennummer 96036 und 96037 liegen die Werte der Th 232-Ausscheidung über dem angenommenen Wert der natürlichen Thoriumausscheidung über Stuhl von 20 mBq/d. Bei der Probennummer 96036 deutet außerdem der Nuklidvektor von Th 228 zu Th 232 (0,9) auf beruflich zugeführtes Thorium hin.

Bei den restlichen drei Probanden läßt die Anwendung der Kriterien aus Kapitel 4 keine Rückschlüsse auf die Inkorporation von Thorium in der betrachteten Arbeitswoche zu.

8.14 Diskussion vorliegender Daten

| Quelle | JAZ [Bq/Jahr] | Effektivdosis [mSv/Jahr] |
|---|---------------|--------------------------|
| Breslin et al., 1952 (Bre 52) ¹⁾ | - | 0,024 - 0,88 |
| Mc Elearny et al. 1993 (McE 93) ²⁾ | 16 - 154 | 10 - 20 |
| Reichelt et al. 1993 (Rei 93) ³⁾ | - | bis 19 |
| Jaquet, 1995 (Jaq 95) ⁴⁾ | 226 | - |
| Berufsgenossenschaft der Feinmechanik und Elektrotechnik Köln (BG 97) ⁵⁾ | < 0,1 - 144,0 | - |
| Vorliegende Arbeit | 4,4 - 37,8 | 0,7 - 7,6 |

¹⁾ Abschätzungen nach Befragungen von WIG-Schweißern

²⁾ Abschätzungen aus Urinalysen

³⁾ Abschätzungen aus Raumlufuntersuchungen

⁴⁾ Abschätzungen aus Aktivitätsgehalt und Abbrand thorierter Elektroden

⁵⁾ Abschätzungen aus Raumlufuntersuchungen

Tabelle 8.13: Vergleich von Untersuchungen zur Strahlenexposition beim WIG-Schweißen mit thorierten Elektroden

Die Ergebnisse der vorliegenden Urinalysen sprechen dafür, dass Effektivdosen von bis zu 20 mSv/Jahr nicht erreicht werden, obwohl es sich bei den gemachten Aktivitäts- und Dosisberechnungen um konservative Abschätzungen, ohne Berücksichtigung des natürlichen und messtechnisch bedingten Untergrunds, handelt.

Auffallend ist der Unterschied zwischen den Werten für die Thoriumausscheidung über Urin, wenn man Raumlufmessungen als Basis für die Berechnungen der Jahresaktivitätszufuhr ansetzt. Die gemessenen Aktivitäten liegen dabei deutlich unter den berechneten Werten. Mögliche Ursache können Unzulänglichkeiten im biokinetischen Modelle sein. Nach neueren Untersuchungen liegen die Thoriumausscheidungen über Urin bei kontinuierlicher Zufuhr niedriger als bisher angenommen. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit könnte die fehlende Berücksichtigung individueller Schweißtechniken sein, die über Jahre in gleicher Art und Weise angewandt wurden und langfristig zu niedrigeren Inkorporationen geführt haben, als die Raumlufmessungen vermuten lassen.

Bei den durchgeführten Stuhluntersuchungen konnte bei zwei von fünf Probanden Hinweise auf eine Inkorporation gefunden werden.



9 Untersuchungen zur Strahlenexposition in einem Betrieb der Feuerfestindustrie

9.1. Allgemeines

In Gießereien ist der Einsatz von Zirkonsand weit verbreitet. Allein 1976 waren ca. 62 % (BGR 76) des bundesweit verarbeiteten Zirkonsandes für den Gebrauch in Gießereien bestimmt. Aufgrund der Schließung vieler Betriebe in den letzten Jahrzehnten, dürfte der Gesamtverbrauch jedoch stark abgenommen haben.

Eine weitere Einsatzmöglichkeit ist die Verarbeitung von Zirkonsanden in der Feuerfestindustrie. Während Zirkonsand in der Gießertechnik nur als Hilfsstoff dient und im fertigen Produkt nicht enthalten ist, ist er in der Feuerfestindustrie Bestandteil desselben. In Deutschland finden ca. 15 % (BGR 76) des eingesetzten Zirkonsandes Verwendung in der Feuerfestindustrie, die ihren Namen von der Eigenschaft ihrer Produkte erhalten hat. Diese kommen in den Bereichen zum Einsatz, in denen extreme Temperaturbeständigkeit notwendig ist.

9.2 Untersuchter Betrieb

Der untersuchte Betrieb stellt Produkte für die Stahlindustrie im In- und Ausland (ca. 60 % Export) her. Haupteinsatzgebiet der Produkte ist die Stahlgusstechnik.

Beispiele für Produkte des Unternehmens:

- Freilaufdüsen für den Stranggießbetrieb (formgebende Auslässe in Flüssig-Metall-Behältern)
 - Schieberklappen zur Regelung des Ausflusses von flüssigem Metall
 - Feuerfeste Steine, die für die Auskleidung thermisch besonders beanspruchter Behälter verwendet werden
- etc.

Bei fast all diesen Produkten handelt es sich um Einwegartikel, die nach Standzeiten von maximal 24 Stunden oder nach einem einzigen Gießvorgang durch neue Teile ersetzt werden. Die Feuerfestindustrie ist in Deutschland nicht weit verbreitet. Direkte Konkurrenzprodukte des Betriebes werden vor allem in Italien, Japan und Israel gefertigt.

9.3 Verarbeitete Rohmaterialien

Bei den verarbeiteten Rohmaterialien handelt es sich hauptsächlich um Zirkonsilicat (ZrSiO_4) und Zirkonoxid (ZrO_2). Zirkonsand besteht überwiegend aus Zirkonsilicat und wird umgangssprachlich auch als Zirkon genannt. Die Dichte von Zirkonsand beträgt je nach Anteil an Zirkonsilicat zwischen 3,8 und 4,7 g/cm^3 (Rei 93).

9.3.1 Eigenschaften für die Feuerfestindustrie

Wichtiges Kriterium für Produkte der Feuerfestindustrie ist ihre Temperaturwechsel- bzw. Temperaturschockbeständigkeit. Beim Stranggießen dürfen die Freilaufdüsen aus Feuerfestmaterial während der schlagartigen Temperaturerhöhung beim Angießen nicht reißen. Neben konstruktiven Maßnahmen spielen dabei die feste Gefügestruktur und die Temperaturbeständigkeit der eingesetzten Zirkonverbindung eine wesentliche Rolle.

Zirkonverbindungen zeichnen sich weiterhin durch ihre mechanische und chemische Korrosionsbeständigkeit aus. Auch bei langen Gießzeiten kommt es nur zu geringen Änderungen der Abmessungen. Gegenüber dem fließenden Stahl erweisen sich die Werkstoffe als äußerst reaktionsträge. Produkte aus Zirkonverbindungen erreichen eine maximale Temperaturbeständigkeit von bis zu 2700 °C bei 95 % ZrO_2 -Gehalt und von 1670 °C bei Zirkonsilicat. Zirkonoxid zeichnet sich außerdem durch seine geringe Neigung mit anderen Oxiden Verbindungen einzugehen aus. Für Anwendungen bei denen es auf lange Einsatzzeiten ankommt (bis 24 Stunden) wird daher Zirkonoxid bevorzugt.

| Bestandteil | Gehalt [%] | |
|-------------------------|---------------|-------------|
| | Werkstoff 1 | Werkstoff 2 |
| | Zirkonsilicat | Zirkonoxid |
| ZrO_2 | 66 | 96 |
| MgO | - | 3 |
| SiO_2 | 33 | 0,7 |
| Al_2O_3 | 0,6 | 0,1 |
| Fe_2O_3 | 0,2 | 0,1 |

Tabelle 9.1: Zusammensetzung zweier typischer Rohstoffe für Stranggießdüsen (Did 97)

9.3.2 Radioaktivität der eingesetzten Zirkonverbindungen

Es gibt eine Reihe gammaspektrometrischer Analysen von Zirkonverbindungen aus den verschiedensten Herkunftsländern. Stellvertretend dafür sind in Tabelle 9.2 die Ergebnisse einiger Untersuchungen aufgeführt.

| Quelle | Th 232 [Bq/kg] | Th gesamt [Bq/kg] | U 238 [Bq/kg] | U gesamt [Bq/kg] | Th 232 / U 238 |
|---------------------------|-------------------|----------------------|------------------|---------------------|----------------------|
| Joh 91 (Zirkon) | 620 ± 30 | - | 3.900 ± 300 | - | 0,17 ± 0,02 |
| Lis 91 (Zirkonoxid) | 360 ± 17 | - | 5.440 ± 310 | - | 0,07 |
| Rei 93 (Zirkonsand) | - | 640 - 720 | - | 2.480 | - |
| Hau 92 (Zirkonoxid) | 1.250 ± 250 | - | 3.900 ± 800 | - | 0,32 |
| ZeI 92 (Zirkonsilicat) | 790 | - | - | - | - |

Tabelle 9.2: Daten der Radioaktivität zirkonhaltiger Verbindungen aus der Literatur

Das Zirkonsilicat, das vom untersuchten Betrieb verarbeitet wird stammt aus Australien und wird über einen deutschen Zwischenhändler bezogen. Das eingesetzte Zirkonoxid kommt aus Südafrika und wird direkt von der Fa. Zirkona Sales, Light Water geliefert. Von beiden Rohstoffen wurde jeweils eine ungemahlene Probe und eine Freilaufdüse für das Stranggießen aus der laufenden Produktion entnommen und gammaspektrometrisch untersucht.

| Probe | Th 232 [Bq/kg] | U 234 [Bq/kg] | U 238 [Bq/kg] | Th 232 / U 238 |
|--|-------------------|------------------|------------------|----------------------|
| Zirkonoxid aus Produktion | 3.230 ± 30 | 10.630 ± 910 | 10.110 ± 3.650 | 0,32 |
| Zirkonsilicat aus Produktion | 550 ± 70 | 2.330 ± 360 | 2.350 ± 1.520 | 0,24 |
| Stranggussdüse (Zirkonsilicat) aus Produktion | 260 ± 40 | - | 1.110 ± 400 | 0,23 |

Tabelle 9.3: Ergebnisse gammaspektrometrischer Messungen der eingesetzten Rohstoffe



9.4 Fertigung

Lediglich 14 % der Produkte des Unternehmens werden aus Zirkonverbindungen hergestellt. Dementsprechend niedrig ist der Anteil des Umgangs der meisten Beschäftigten mit den radioaktiven Rohstoffen. Trotzdem gibt es im Bereich der Fertigung Arbeitsorte und Tätigkeiten an denen ein vermehrter und intensiver Kontakt vorhanden ist.

Beim Umgang mit Zirkonsanden im betrachteten Betrieb sind folgende Arbeitsschritte zu unterscheiden und bei der Untersuchung möglicher Strahlenexpositionen zu beachten:

- Transport und Lagerung der Rohstoffe
- Bearbeitung und Aufbereitung (Mahlen, Sieben, Mischen)
- Pressen und Sintern
- Lagern der Fertigprodukte sowie Entsorgung der Reststoffe und des Ausschusses

Transport und Lagerung:

Der Zirkonsand wird in einer großen, hohen Halle auf dem Firmengelände gelagert. Die Halle ist nach beiden Seiten offen und deshalb gut belüftet. Die Anlieferung erfolgt durch LKW's. Den Abtransport in die benachbarten Zerkleinerungs- und Aufbereitungsgebäude übernimmt ein Staplerfahrer. Der Sand befindet sich verpackt in großen Säcken oder in kleineren Tonnen. Messungen in einer Gießerei (Rei 93) ergaben folgende Messwerte der Ortsdosisleistung eines Zirkonsandsackes: Kontakt 0,8 $\mu\text{Sv/h}$, 1 m Entfernung 0,16 $\mu\text{Sv/h}$, Untergrund 0,09 $\mu\text{Sv/h}$.

Bearbeitung und Aufbereitung:

Der ungemahlene Sand wird von den Staplerfahrern in das Obergeschoss des nebenliegenden Zerkleinerungs- und Aufbereitungsgebäude gebracht. Die Säcke werden geöffnet und in große Öffnungen am Boden des Gebäudes geleert. Von dort aus gelangt der Sand durch Rohre in zwei Mühlen im Untergeschoss. Die Mühlen zermahlen den Sand und dienen außerdem als Mischer. Die Mühlen sind einzeln in kleinen Räumen untergebracht (wegen der Geräuschentwicklung). Um die erwünschten Eigenschaften für das jeweilige Produkt zu erreichen werden dem Zirkonsand beim Mischvorgang verschiedene Zusatzstoffe (Oxide, Bindemittel) beigegeben. Der Boden der Räume und die Maschinen sind mit einer Sand- und Staubschicht bedeckt. An den Rohren für die Befüllung der Mischer sind einfache Absaugungen angebracht



Pressen und Sintern:

Nach der beschriebenen Aufbereitung gelangen die Gemische über Rohre in große Lagersilos über der Presserei. Die Grundstoffe werden über Dosiereinrichtungen in die Pressen verteilt. Die Anlage zur Verteilung und Dosierung ist komplett automatisiert und wird über eine räumlich getrennte Schaltwarte überwacht. Auch in diesen Räumen sind Maschinen und Boden mit einer Sand- und Staubschicht bedeckt.

In der Presserei werden die Rohmaterialien unter hohem Druck zu Hülsen, Schiebern etc. gepresst. Die Belastung durch Staub und Sand ist durch den kompakten Zustand der Produkte gering. Die fertig gepressten Teile werden in langen Tunnelöfen bei ca. 1400 -1600 °C gesintert.

Lagerung der Fertigprodukte:

Die fertigen Keramikteile werden nach dem Abkühlen in einer Halle gelagert und für den Abtransport vorbereitet.

9.5 Möglichkeiten der Strahlenexposition

Die Staubbelastung und damit die Möglichkeit einer Inkorporation über Inhalation in der Presserei, im Gebäude mit den Tunnelöfen, in den Lagerhallen für die Fertigprodukte sowie im Rohstofflager ist gering. Hier dominiert die Möglichkeit der externen Strahlenexposition durch gelagerte Rohstoffe und Fertigprodukte und der Inkorporation durch Ingestion. Nach Auskunft des Fertigungsleiters werden in der Presserei und an den Tunnelöfen öfters die Arbeitsplätze gewechselt, so dass eine langjährige Besetzung eines bestimmten Bereiches untypisch ist. Die Mitarbeiter an diesen Arbeitsplätzen sind somit weniger für Ausscheidungsanalysen über den Urin geeignet.

Relevant für eine Untersuchung Beschäftigter erscheint alleine der Bereich der Bearbeitung und Aufbereitung. Entsprechend dieser Einschätzung und nach Absprache mit Verantwortlichen und Mitarbeitern wurden fünf Probanden ausgewählt, die zur Abgabe einer 24h-Urinprobe bereit waren.

9.6 Probanden

Die Probanden arbeiten langjährig im Bereich der Bearbeitung und Aufbereitung der zirkonhaltigen Rohmaterialien. Um die individuellen Arbeits- und Inkorporationsbedingungen beurteilen zu können, wurden ihnen ein Fragebogen zu ihrem Arbeitsumfeld vorgelegt.

| <p>Tätigkeit: ① Arbeit im Rohstofflager ② Transport mit Stapler ③ Transport per Hand, Wagen ④ Mischen und Mahlen ⑤ Silobefüllung</p> <p>Intensität: ⑥ Umgang mit ⑦ / ⑧ seit ... Jahren ⑦ Zirkonoxid ⑧ Zirkonsilicat ⑨ Intensität des Umgangs (eigene Angaben)</p> | | | | | | | | | |
|--|------|------|------|------|----|----|----|----|-------------|
| Probe | ① | ② | ③ | ④ | ⑤ | ⑥ | ⑦ | ⑧ | ⑨ |
| Feu-9701 | NEIN | NEIN | JA | JA | JA | 10 | JA | JA | 4 h / Tag |
| Feu-9702 | NEIN | NEIN | JA | JA | JA | 12 | JA | JA | 8 h / Tag |
| Feu-9704 | JA | JA | NEIN | NEIN | JA | 15 | JA | JA | 2 h / Woche |
| Feu-9706 | NEIN | NEIN | JA | JA | JA | 19 | JA | JA | 4 h / Tag |
| Feu-9707 | NEIN | NEIN | JA | JA | JA | 9 | JA | JA | 8 h / Tag |

Tabelle 9.4: Arbeitsumfeld und -intensität des Umgangs der untersuchten Probanden

9.7 Ergebnisse der Urinalysen

| Probe | Messwert [mBq/d] | | | | | Berechnet |
|----------|------------------|------------|--------|------------|-------------------|---------------|
| | U 234 | Fehler [%] | U -238 | Fehler [%] | Th 232 | U 234 / U 238 |
| Feu-9701 | 6,1 | 5,9 | 3,5 | 10,7 | 1,1 ¹⁾ | 1,7 |
| Feu-9702 | 3,9 | 5,5 | 2,2 | 15,7 | 0,5 ¹⁾ | 1,8 |
| Feu-9704 | 6,4 | 9,7 | 4,2 | 160 | 0,5 ¹⁾ | 1,5 |
| Feu-9706 | 0,9 | 23,3 | 0,8 | 9,4 | - ²⁾ | 1,1 |
| Feu-9707 | 1,2 | 31,2 | 1,1 | 17,9 | 0,2 ¹⁾ | 1,1 |

1) Nachweisgrenze 2) Probe ausgefallen

Tabelle 9.5 Ergebnisse der Urinalysen

9.8 Diskussion

Die Ergebnisse der Urinalysen der fünf Probanden weisen nicht auf eine langjährige Inkorporation über Inhalation thoriumhaltiger Verbindungen und damit auf das Vorhandensein von Körperdepots hin. Zwar liegen die ermittelten Nachweisgrenzen für Th 232 bis zum Faktor 10 über dem Wert der angenommenen natürlichen Ausscheidung. Bei den aufgenommenen Alphaspektren sind im Bereich der Hauptlinie des Th 232 (4.013 MeV) keine Anzeichen von Impulsen über dem messtechnisch bedingten Untergrund zu erkennen. Für Uran liegt der Wert der angenommene natürliche Ausscheidung über den Urin zwischen 0,05 und 3 mBq U_{nat} / d (Dal 98). Die gemessenen Ausscheidungswerte liegen damit über diesen Werten.

Die ICRP 23 geht von Ausscheidungswerten des U 238 bis zu 6 mBq/d aus. Dokumentierte Überschreitungen bei beruflich nicht exponierten Personen finden sich bei Fischbach (Fis 98). Er ermittelte Werte für die natürliche Uranausscheidung über Urin von bis zu 17 mBq U_{nat} / d. 90 % seiner Messwerte lagen jedoch unter 1,5 mBq/d. Bei der gleichen Untersuchung ermittelte der Autor für 100 Analysen strahlenexponierter Personen einen Mittelwert von $2,6 \pm 1,8$ mBq U_{nat} / d.



Eine Unterscheidung zwischen strahlenexponierten Personen und beruflich nicht belasteten Personen erscheint anhand der Uran-Ausscheidung über den Urin äußerst schwierig. Tägliche Schwankungen durch die Aufnahme von Uran über Nahrung und Getränke können zu Messwerten führen, die die Größenordnungen beruflich strahlenexponierter Personen erreichen. Die Unterschiede in den Ausscheidungswerten können zumindest zum Teil auf regionale Unterschiede des Urangehaltes in und auf den Lebensmitteln und im Trinkwasser zurückgeführt werden.

Untersuchungen an der Meßstelle bei beruflich nicht exponierten Personen mit ähnlichem geologischen Hintergrund wie die Probanden ergaben Messwerte bis 3,3 mBq U 238 / d (Mül 98). Die gemessenen Ausscheidungen liegen also im Bereich der natürlichen Ausscheidung. Grenzwerte gem. StrlSchV werden nicht berührt. Strahlenschutzmaßnahmen aufgrund des allgemeinen oder besonderen Risikos sind nicht veranlasst, da das Inkorporationsrisiko gering ist und die äußere Strahlenbelastung im Bereich der natürlichen Umgebungsstrahlung liegt.

10 Untersuchungen zur Strahlenexposition in einem Gießereibetrieb

10.1 Anlass der Untersuchung

Am 30.01.1998 lieferte ein bayerisches Eisenwerk (EW) Gussprodukte an einen Kunden. Dabei wurde an der Eingangswaage am Liefer-LKW erhöhte ionisierende Strahlung festgestellt. Der LKW war mit Gussteilen und Transportbehältern, die mit sogenannter Schlichte gefüllt waren, beladen. Nach Rückkehr des Fahrzeuges wurde die Geschäftsleitung des Eisenwerks vom Vorfall informiert. Diese veranlasste Messungen mit einem firmeneigenen Dosisleistungsmessgerät russischer Herkunft. Dem LfU wurde daraufhin gemeldet, es seien an den Transportbehältern Dosisleistungen bis 44 $\mu\text{Sv/h}$ gemessen worden. Die Schlichtebehälter wurden daraufhin am Rand des Werksgeländes des Eisenwerks abgestellt (Abbildung 10.1). Vom weiteren Gebrauch der Schlichte wurde vorerst abgesehen.

10.2 Allgemeines

Das EW stellt Gussteile in den verschiedensten Qualitäten her. Die Produktion beträgt ca. 1000 to/Monat. Sämtliche technischen Einrichtungen einer Gießerei (Kernmacherei, Formanlage, Handformerei, Putzerei, Qualitätssicherung) sind im Werk zu finden.

10.3 Verwendung von Schlichte

Zirkonsand wird in Gießereien sehr vielfältig verwendet. Neben der Anwendung als hitzebeständiger Formsand und als Zusatz in angemischten Bindemitteln ist er wesentlicher Bestandteil der sogenannten Schlichte.

Vor dem eigentlichen Metallguss werden die Modellkörper mit einer Schlamm-Masse (Schlichte) überzogen. Die Schlichte dient als dünne Sperrschicht zwischen den Formteilen und dem Metall. Sie ermöglicht u.a. eine glatte Oberfläche des Guss-Stückes und soll Vererzungszonen verhindern. Die im EW verwendete Schlichte ist eine dickflüssige Emulsion aus seltenen Erden (u.a. Zirkonsilicat), Isopropylalkohol und Wasser. Der Jahresverbrauch an Schlichte liegt zwischen 80 und 100 to.

10.4 Ortsbegehung und Messungen

10.4.1 Schlichte-Transportbehälter

Die Schlichte-Transportbehälter bestehen aus einem Edelstahltank mit einer großen, verschließbaren Öffnung auf der Oberseite und einem seitlichen Ablass. Der eigentliche Tank ist von einem quaderförmigen Profilrahmen umgeben.



Abbildung 10.1: Lagerung der Transportbehälter auf dem Werksgelände des EWs

Drei der abgestellten sechs Behälter waren nahezu leer. Die übrigen Tanks waren voll frischer Schlichte. An den Behältern wurde vom LfU an verschiedenen Stellen mit einem Szintomat 6134 der Fa. Automess die Ortsdosisleistung gemessen (Tabelle 10.1). Im unteren Bereich eines der gefüllten Behälter (direkt an der Behälteroberfläche) wurde dabei ein Maximalwert von $0,8 \mu\text{Sv/h}$ ermittelt.

| Behälter | Messposition | Messwert [$\mu\text{Sv/h}$] |
|-------------|--|-------------------------------|
| 1 (leer) | Unten am Behälter - Kontakt mit Oberfläche | 0,4 |
| | Unten am Behälter - in 10 cm Abstand | 0,2 |
| | Oben am Behälter - Kontakt mit Oberfläche | 0,1 |
| | Oben am Behälter - in 10 cm Abstand | 0,1 |
| 2 (voll) | Unten am Behälter - Kontakt mit Oberfläche | 0,8 |
| | Unten am Behälter - in 10 cm Abstand | 0,5 |
| | Oben am Behälter - Kontakt mit Oberfläche | 0,2 |
| | Oben am Behälter - in 10 cm Abstand | 0,2 |

Tabelle 10.1: Ortsdosisleistungen an zwei repräsentativen Schlichtebehältern (Abbildung 10.1)

Bei allen Behältern waren die Messwerte im unteren Bereich höher als im oberen Bereich. Dies ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass sich die festen Bestandteile der Schlichte bei Lagerung mit der Zeit am Boden des Edelstahl tanks absetzen.

Die gemeldeten hohen Messwerte von bis zu $44 \mu\text{Sv/h}$ konnten nicht reproduziert werden. Vergleichsmessungen zwischen dem firmeneigenen Messgerät und dem Dosisleistungsmessgerät des LfU ergaben übereinstimmende Werte (Tabelle 10.2).

| Messung | Messgerät EW [$\mu\text{Sv/h}$] (Anzeige mit zwei Nachkommastellen) | Messgerät LfU [$\mu\text{Sv/h}$] |
|---------------------------|--|---------------------------------------|
| Nulleffekt | 0,17 | 0,1 |
| Auslass Schlichtebehälter | 0,73 | 0,8 |

Tabelle 10.2: Vergleichsmessung Messgerät LfU / Messgerät EW

10.4.2 Gießerei

Besonderes Augenmerk wurde auf Möglichkeiten zur äußeren und inneren Strahlenexposition beim Umgang mit Schlichtematerial gelegt.

Das EW setzt zwei Verfahren ein, um die Formteile aus Formsand und Bindemitteln mit einer Schicht aus Schlichte zu überziehen:

- 1. Das Eintauchen des Formteils in eine Wanne mit dünnflüssiger Schlichte**
- 2. Das Besprühen des Formteils mit Schlichte an einer Schlichtestation
(Abbildung 10.2)**

Bei beiden Arbeitsschritten besteht die Möglichkeit der Inkorporation, insbesondere durch Ingestion. Aktivitätszufuhr durch Inhalation ist nur bedingt beim Besprühen der Formteile an der Schlichtestation (Abbildung 10.2) zu erwarten.



Abbildung 10.2: Schlichtestation zum Aufsprühen der Schlichte

In den Produktionshallen des EWs wurden stichprobenartig Dosisleistungsmessungen an den Arbeitsstätten und an mit Schlichte behandelten Formteilen vorgenommen (Abbildung 10.3).



Abbildung 10.3: Formteile aus der Produktion

Es ergaben sich dabei durchwegs Werte im Bereich der natürlichen Umgebungsstrahlung von rund $0,1 \mu\text{Sv/h}$.

Nach dem Erkalten wird das Guss-Stück teils in Handarbeit vom Sand der sie umgebenden Formteile befreit (Abbildung 10.4).



Abbildung 10.4: Abschlagen des Formsands vom Guss-Stück



Die festen Bestandteile der Schlichte (u.a. Zirkonsilicat) befinden sich nun verteilt im abgeschlagenen Formsand. Die Ortsdosisleistung des Formsands lag ebenfalls im Bereich der natürlichen Umgebungsstrahlung.

Das Inkorporationsrisiko durch Inhalation wird als gering eingeschätzt, da das abgeschlagene Material sehr grobkörnig ist. Staub- und Aerosolbildung ist somit weitgehend ausgeschlossen.

Abschließend wurde der LKW vermessen, der an der Eingangswaage des Kunden durch erhöhte ionisierende Strahlung auffiel und damit Auslöser der Untersuchung war. Messungen auf der Ladefläche des LKW ergaben keine Werte über 0,1 $\mu\text{Sv/h}$.

10.5 Messungen an der Messstelle für Radiotoxikologie

Zur Absicherung der Messungen vor Ort und zur Abschätzung des Inkorporationsrisikos, wurden an der Meßstelle Materialproben, Wischtests und Ausscheidungsproben untersucht.

10.5.1 Wischtestproben

Insgesamt wurden fünf Wischtestproben (Bezugsfläche: jeweils 100 cm^2) von der Außenseite der Schlichtebehälter sowie aus der Fertigung vermessen.

Die Ergebnisse der Messungen auf Gesamtalpha- und Gesamtbetaaktivität sind in Tabelle 10.3 aufgeführt.

| Nr. | Ort der Probenahme | Aktivität [Bq] | Fehler [%] | Ergebnis [Bq/cm ²] |
|--|---|-----------------------|------------|--------------------------------|
| 1 | Schlichtebehälter Oberseite | α : 2,8 E-01 | 16,0 | 2,8 E-03 |
| | Schlichte abgelagert als roter Staub | β : 4,9 E-01 | 12,3 | 4,9 E-03 |
| 2 | Schlichtebehälter Auslass | α : < 1,4 E-02 | - | < 1,4 E-04 |
| | | β : < 3,3 E-02 | - | < 3,3 E-04 |
| 3 | Schlichtebehälter Profilrahmen | α : 1,4 E-02 | 81,7 | 1,4 E-04 |
| | | β : < 3,2 E-02 | - | < 3,2 E-04 |
| 4 | mit Schlichte behandeltes Formteil | α : 3,8 E-02 | 45,9 | 3,8 E-04 |
| | | β : 1,3 E-01 | 28,1 | 1,3 E-03 |
| 5 | Schlichtestation von Schlauch für Schlichteauftrag | α : 7,9 E-02 | 32,1 | 7,9 E-04 |
| | | β : 1,6 E-01 | 25,5 | 1,6 E-03 |
| <p><u>Anmerkungen:</u> Messzeit 100 min Bezugsfläche 100 cm² α: Gesamtaktivität aller alphastrahlenden Nuklide β: Gesamtaktivität aller betastrahlenden Nuklide</p> <p><u>Zum Vergleich:</u> Grenzwert für Schutzmaßnahmen bei Oberflächenkontaminationen von Arbeitsplätzen und Gegenständen gemäß Anlage IX StrlSchV (StrlSchV 89)- außerhalb betrieblicher Überwachungsbereiche: α: 5,0 E-02 Bq/cm² β: 5,0 E-01 Bq/cm²</p> | | | | |

Tabelle 10.3: Gesamt-Alpha- / Gesamt-Betamessung der Wischtestproben

Grenzwerte wurden auf keinem der Wischtests berührt.

10.5.2 Materialproben

Drei unterschiedliche, repräsentative Proben des Schlichtematerials, ein mit Schlichte überzogenes Formteil sowie ein Wischtest, wurden gammaspektrometrisch vermessen (insgesamt 5 Proben).

Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Messungen sind in Tabelle 10.4 und in Tabelle 10.5 aufgeführt.

| Probe | Uran [Bq/kg] (Fehler in %) | | | |
|--|-----------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| | U 234 über | | U 235 | U 238 über |
| | Pb 214 | Bi 214 | direkt | Pa 234m |
| eingetrocknete Schlichte (m = 230 g) Probe 1 | 3,2 E+03 (11,5) | 2,9 E+03 (9,2) | 1,6 E+02 (14,4) | 3,1 E+03 (22,4) |
| dünnflüssige Schlichte (m = 880 g) Probe 2 | 1,3 E+03 (6,4) | 1,8 E+03 (9,3) | 1,0 E+02 (25,3) | 2,3 E+03 (29,6) |
| dickflüssige Schlichte (m = 630 g) Probe 3 | 2,4 E+03 (11,1) | 1,9 E+03 (10,0) | 1,2 E+02 (55,0) | ≤ 2,0 E+03 |
| Formteil mit Schlichte (m = 51 g) Probe 4 | 5,7 E+01 (17,8) | 5,4 E+01 (20,2) | 7,7 E+00 (43,6) | ≤ 5,2 E+02 |
| Probe | Uran [Bq/Wischtest] (Fehler in %) | | | |
| | U 234 über | | U 235 | U 238 über |
| | Pb 214 | Bi 214 | direkt | Pa 234m |
| Wischtest; Schlichte abgelagert als roter Staub, Fläche=100 cm ² Probe 5 | 1,8 E-01 (27,6) | 1,7 E-01 (32,0) | 4,2 E-02 (63,3) | ≤ 4,2 E+00 |

Tabelle 10.4: Gammaskopmetrische Bestimmung wichtiger Urannuklide in verschiedenen schlichtehaltigen Proben



| Probe | Thorium [Bq/kg] (Fehler in %) | | | | |
|---------|---------------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| | Th 228 über | | Th 230 | Th 232 über | |
| | Pb 212 | Bi 212 | direkt | Ac 228 | Th 228 |
| Probe 1 | 5,2 E+02 (11,8) | 5,6 E+02 (12,6) | 7,8 E+03 (37,0) | 4,8 E+02 (9,3) | 5,1 E+02 (10,5) |
| Probe 2 | 3,6 E+02 (11,2) | 3,5 E+02 (17,1) | 5,5 E+03 (39,5) | 3,3 E+02 (10,4) | 3,6 E+02 (10,6) |
| Probe 3 | 4,3 E+02 (13,6) | 3,6 E+02 (39,1) | ≤ 4,0 E+03 | 3,6 E+02 (16,4) | 4,4 E+02 (12,0) |
| Probe 4 | 1,5 E+01 (40,5) | ≤ 3,3 E+01 | ≤ 1,1 E+03 | 1,2E+01 (69,7) | - |
| Probe | Thorium [Bq/Wischttest] (Fehler in %) | | | | |
| | Th 228 über | | Th 230 | Th 232 über | |
| | Ac 228 | direkt | direkt | Pb 212 | Bi 212 |
| Probe 5 | ≤ 5,5 E-02 | - | ≤ 7,8 E+00 | ≤ 9,2 E-02 | ≤ 3,7 E-01 |

Tabelle 10.5: Gammaspektrometrische Bestimmung wichtiger Thoriumnuklide in verschiedenen schlichtehaltigen Proben (Probennummern nach Tabelle 10.4)

Die untersuchte Schlichte enthält somit Uran in der Größenordnung von 4-6 kBq/kg und ca. 4-8 kBq Th-230/kg aus der Uranzerfallsreihe sowie ca. 0,7 - 1 kBq Th 228 und Th 232, im radioaktiven Gleichgewicht. Die Aktivitätskonzentration des Formteiles ist um den Faktor 30-60 niedriger.

10.5.3 Ausscheidungsproben

Nach Absprache mit der Geschäftsleitung wurden zwei Mitarbeiter aus der Fertigung ausgewählt, die langjährig und kontinuierlich mit Schlichte umgehen. Sie arbeiten im Bereich des Auftrags der Schlichte auf die Formteile und in der Putzerei.

Die Ergebnisse der Urin- und Stuhlanalysen, die alphaspektrometrisch untersucht wurden, sind in Tabelle 10.6 aufgeführt.

| Probe | Thorium | | | | Uran ¹⁾ | | |
|------------------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|-----------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|---------------------|
| | Th 228 [mBq/d] Fehler [%] | Th 230 [mBq/d] Fehler [%] | Th 232 [mBq/d] Fehler [%] | Th 228 / Th 232 | U 234 [mBq/d] Fehler [%] | U 238 [mBq/d] Fehler [%] | U 234 / U 238 |
| Proband 1 24h-Stuhl | 30,2 17 | 4,6 22 | 2,3 43 | 13,1 | 29,5 4,4 | 23,1 5,1 | 1,3 |
| Proband 2 24h-Stuhl | 21,7 171 | 5,7 18 | 4,2 26 | 5,2 | 32,7 3,0 | 23,0 2,6 | 1,4 |
| Proband 1 24h-Urin | 0,33 12 | n.b. | 0,18 62 | 1,8 | n.b. | n.b. | n.b. |
| Proband 2 24h-Urin | 0,40 37 | n.b. | 0,21 100 | 1,9 | n.b. | n.b. | n.b. |

n.b.: Nicht bestimmt

¹⁾ keine Tracer-Zugabe, deshalb Abschätzung mit angenommener chemischer Ausbeute von 50%

Tabelle 10.6: Ergebnisse der Ausscheidungsuntersuchungen

Die Größenordnung der gemessenen Aktivitäten und insbesondere die Isotopenverhältnisse deuten sowohl für Uran als auch für Thorium auf natürlich bedingte Ausscheidung über Stuhl und Urin hin.

10.6 Bewertung der Messergebnisse

Die in der Schlichte enthaltenen Bestandteile an Thorium und Uran sind für den Produktionsprozess und das Produkt ohne jegliche Bedeutung. Sie werden weder wegen ihrer physikalischen Eigenschaften (z.B. ionisierende Strahlung) noch wegen ihrer chemischen Eigenschaften bewusst und zweckgerichtet genutzt.

Grenzwerte gem. StrlSchV werden nicht berührt. Strahlenschutzmaßnahmen aufgrund des allgemeinen oder besonderen Risikos sind nicht veranlasst, da das Inkorporationsrisiko gering ist und die äußere Strahlenbelastung im Bereich der natürlichen Umgebungsstrahlung liegt.

11 Untersuchungen zur Strahlenexposition in einem Betrieb der Lampentechnologie

11.1 Einsatz von Thorium in der Lampentechnologie

11.1.1 Grundsätzliches

1892 erfand Carl Auer von Welsbach, Jahre vor der Entdeckung der Radioaktivität des Thoriums, besonders hell leuchtende Gasglühstrümpfe aus Cer-haltigem ThO_2 . Auch heute noch wird Thorium bei der Lichterzeugung eingesetzt.

In modernen, elektrischen Gasentladungslampen findet Thorium Verwendung als Dotierungsmittel der eingesetzten Wolframelektroden. Funktionsprinzip solch einer Gasentladungslampe ist das Erzeugen einer hohen Lichtemission mittels eines elektrischen Lichtbogens zwischen zwei Elektroden (Anode und Kathode) in einem gasbefüllten Entladungskörper aus Glas.

11.1.2 Verwendung von Thorium in der Lampentechnologie

Thorium kommt hierbei, je nach Anforderung und Lampentyp, in verschiedenen Einsatzformen

zur Anwendung:

- ThO_2 - haltiges Wolfram-Elektrodenmaterial
- ThO_2 - haltige Elektrodenbeschichtung
- ThO_2 - Sinterkörper als Elektrodeneinsätze
- Th - Metallfolien als Elektrodenbauteile
- ThJ_4 - haltige Füllsubstanzen (Wein 93)

Thorium wird dabei aufgrund seiner speziellen chemischen und physikalischen Eigenschaften eingesetzt, die sich die Hersteller zur Verbesserung der Betriebseigenschaften der Lampen zunutze machen:

1. Vorionisation des Entladungsgases durch die Eigenstrahlung des Thoriums
2. Verringerung der Elektronenaustrittsarbeit (von 4,5 eV für reines Wolfram auf bis zu



2,8 eV für dotiertes Wolfram) (Ber 94)

3. Verfestigung des Wolframgefüges der Elektroden

Diese Eigenschaften führen zu einem besseren Zündverhalten, einer geringeren Elektrodenbelastung, einem stabilen Lichtbogen im Entladungskörper, einem verminderten Abbrand der Elektroden und damit einer erhöhten Lebensdauer der Lampen (Wein 93, Mei 98).

11.1.3 Einsatzfelder der Gasentladungslampen

Gasentladungslampen mit thorierten Elektroden kommen überall dort zum Einsatz, wo es auf hohe Leuchtdichte und lange Lebensdauer bei dauerhaftem Betrieb ankommt.

Sie werden eingesetzt als:

- Projektionslampen (z.B. Kinoprojektoren)
- Beleuchtung von Sportstätten (Flutlicht)
- Beleuchtung von großräumigen Hallen und großflächigen Plätzen
- Flughafenbeleuchtungen
- Einsatz in Leuchttürmen (Mei 98)

11.1.4 Relevanz für den Strahlenschutz

Beim Umgang mit thoriumhaltigen Stoffen kann es während des Herstellungsprozesses der Lampenelektroden zu externer und innerer Strahlenexposition kommen. Von besonderer Bedeutung für den Strahlenschutz sind dabei die Arbeitsgänge, bei denen die Inkorporation von thoriertem Material möglich ist. Dies sind insbesondere Arbeitsplätze, bei denen lungengängige, thoriumhaltige Aerosole und Stäube gebildet werden können (Umgang mit den pulverförmigen Rohstoffen, Schneiden oder Schleifen des thorierten Wolframs).

Strahlenschutzrechtliche Maßnahmen im Betrieb sind die Erfordernis einer Umgangsgenehmigung für den radioaktiven Rohstoff, das Einrichten betrieblicher Überwachungsbereiche, ein umfangreicher Arbeitsschutz, die strahlenschutzärztliche Betreuung der Mitarbeiter sowie die messtechnische Überwachung der Arbeitsplätze (Atemluftüberwachung) und der Mitarbeiter (Ausscheidungsmessungen).

11.2 Herstellungsprozess im untersuchten Betrieb

Je nach Verwendungszweck und Herstellungsverfahren kommen zwei chemische Verbindungen von Thorium zum Einsatz: ThO_2 (Thoriumdioxid) oder $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$ (Thoriumnitrat-Tetrahydrat). Im Rahmen der Untersuchungen wird ein für den Strahlenschutz relevanter Teil des Herstellungsprozess thoriierter Lampenelektroden betrachtet.

Verarbeitete Rohstoffe sind Thoriumnitrat und Wolframoxid in Pulverform. Das Thoriumnitrat liegt dabei als feiner, weisser, kristalliner und hygroskopischer Feststoff vor. Nach Abwiegen und Auflösen des Thoriumnitrats in Wasser (Abbildung 11.1) wird Wolframoxid in einem Mischer (Abbildung 11.2) mit der angesetzten Thoriumnitratlösung getränkt.



Abbildung 11.1: Abwiegen und Auflösen des Thoriumnitrats (Dopraum)



Abbildung 11.2: Mischer zum Durchmischen und Benetzen (Doproium)



Abbildung 11.3: Ansicht Doproium

Danach wird das benetzte Wolframoxid aus dem Mischer entfernt. Halbrunde Metallschiffchen werden mit genau abgewogenen Mengen des feuchten Wolframoxids befüllt (Abbildung 11.4) und zu den Reduktionsöfen in eine vom Doproium räumlich getrennte Werkshalle (Reduktion) gebracht.



Abbildung 11.4: Befüllen der Metallschiffchen (Dopraum)

Bei den bisher betrachteten Arbeitsschritten, die alle in einem einzigen Raum (Dopraum - Abbildung 11.3) stattfinden, haben die Mitarbeiter ausschließlichen Umgang mit Thorium in der Nitratform.

Die befüllten Metallschiffchen werden nacheinander in die Röhren eines Reduktionsofens (Abbildung 11.5) geschoben.

Im Ofen wird die Füllung aus Wolframoxid und Thoriumnitrat unter Wasserstoffatmosphäre reduziert (Wolframoxid \rightarrow Wolfram, Thoriumnitrat \rightarrow Thoriumoxid). Die Wolframpulverkörner sind nach der Reduktion mit einer Hülle aus Thoriumoxidteilchen umgeben. Im Reduktionsraum haben die Mitarbeiter daher auch Umgang mit der Oxidform des Thoriums.



Abbildung 11.5: Bestücken eines Reduktionsofens

Die folgenden Arbeitsschritte, die bei vorliegender Untersuchung nicht näher betrachtet wurden, sind das Pressen des Wolframpulvers zu Stäben, das Sintern der gepressten Stäbe, die mechanische Bearbeitung der gesinterten Stäbe (Walzen, Hämmern, Ziehen) und die abschließende Fertigung der Lampenelektroden (Mei 98).

11.3 Messkampagne

11.3.1 Grundsätzliches

Die Probenahmen in diesem Betrieb der Lampentechnologie fanden vor, während und nach einer Dopkampagne (Dotieren des Wolframs mit Thorium) in der Arbeitswoche vom



04.05.1998 bis zum 08.05.1998 statt. Während dieser Woche hatten sechs Mitarbeiter des Unternehmens im drei-Schicht-Betrieb täglichen Umgang mit Thorium. Die Messungen des LfU wurden im Rahmen einer Messkampagne durchgeführt, an denen sich verschiedene Institutionen aus dem Bereich Strahlenschutz aus ganz Deutschland beteiligten.

11.3.2 Teilnehmende Institutionen und eingesetzte Messverfahren

| Institution (Vertreter) | Eingesetztes Messverfahren |
|--|---|
| Berufsgenossenschaft für Feinmechanik und Elektrotechnik, Referat Strahlenschutz II, 50968 Köln (Hr. Dr. Ludwig) | Personenbezogene Atemluftüberwachung (PPG) Raumluftüberwachung (VC 25) |
| Bundesamt für Strahlenschutz, 10318 Berlin (Hr. Dr. Naumann) | Stuhlanalysen (Alphaspektrometrie) |
| Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Institut für Strahlenschutz, 85785 Oberschleißheim (Hr. Dr. Werner) | Stuhl- und Urinalysen (ICP-MS) - Vergleichsmessungen |
| Fa. OSRAM GmbH, Strahlenschutz und Isotopentechnik, 81543 München (Hr. Dr. Weinmüller) | Raumluftüberwachung (VC 25) |
| Universitätsklinikum Benjamin Franklin, Inkorporationsmeßstelle, 12203 Berlin (Hr. Dr. Riedel) | Urinalysen (Alphaspektrometrie) Exhalationsmessungen (Alphamessungen) Blutproben (Neutronenaktivierungsanalyse) |
| Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, Meßstelle für Radiotoxikologie, 95326 Kulmbach (Hr. Sternad, Hr. Dr. Kratzel) | Stuhlanalysen (Alphaspektrometrie) |

11.3.3 Ziel der Messungen

Ziel der Untersuchung war eine Aussage über die innere Strahlenexposition von Personen, die im betrachteten Teil der Fertigung beschäftigt sind.



Durch den Einsatz verschiedener Messtechniken sollte die Vergleichbarkeit der Messverfahren überprüft, Ergebnisse ergänzt und die Übereinstimmung mit vorhandenen biokinetischen Modellen diskutiert werden.

Das LfU war in Zusammenarbeit mit dem Bundesamt für Strahlenschutz in Berlin für die Untersuchung der Stuhlproben verantwortlich. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Ergebnisse des LfU vorgestellt.

11.4 Messumgebung

11.4.1 Voraussetzungen

Für die Messungen am Arbeitsplatz und Mitarbeitern während des Umgangs mit thoriumhaltigen Stoffen boten sich ideale Voraussetzungen:

1. Die betroffenen Mitarbeiter (Probanden) und ihre Vorgesetzten waren zu einer uneingeschränkten Zusammenarbeit bereit
2. Die Probanden hatten seit mehreren Monaten keinen Umgang mit thoriertem Material
3. Der Umgang mit thorierten Material während der Dopkampagne war zeitlich und räumlich begrenzt
4. Die verschiedenen Messverfahren der Strahlenschutzüberwachung konnten parallel eingesetzt werden und die Ergebnisse verglichen werden

11.4.2 Umgangsorte

Die Untersuchungen während der Dopkampagne blieben auf die in Kapitel 11.2 näher beschriebenen Abschnitte (Dopraum und Reduktion) beschränkt.

| Ort | Thoriumverbindung | Mögliche Inkorporation |
|-----------|--------------------------|------------------------|
| Dopraum | vorwiegend Thoriumnitrat | Ingestion, Inhalation |
| Reduktion | vorwiegend Thoriumoxid | Ingestion, Inhalation |

Tabelle 11.1: Messorte und ihre Charakteristik



11.4.3 Probanden

An den Umgangsorten waren während der Dopkampagne sechs Personen beschäftigt. Die Mitarbeiter haben während der Dopkampagne als Zweiergruppen (Vorarbeiter und Arbeiter) im Dreischichtbetrieb gearbeitet. Beide Probanden hatten während ihrer Schicht Arbeiten im Dopraum und in der Reduktion zu verrichten. Bei der Arbeitseinteilung wurde darauf geachtet, dass einer der beiden Arbeiter bevorzugt im Dopraum beschäftigt war (Umgang mit Thoriumnitrat) während der andere vorwiegend in der Reduktion (Umgang mit Thoriumoxid) tätig war. Dadurch erhoffte man sich eine Aussage über das unterschiedliche Inkorporationsrisiko an beiden Arbeitsstätten bzw. über die unterschiedlichen biokinetischen Eigenschaften der jeweils vorliegenden Thoriumverbindung.

| Bezeichnung | Schicht | Bevorzugter Arbeitsort | Maskenfaktor ¹⁾ |
|-------------|--------------|------------------------|----------------------------|
| Proband 1 | Spätschicht | Dopraum | 0,01 |
| Proband 2 | Frühschicht | Reduktion | 1 |
| Proband 3 | Nachtschicht | Dopraum | 0,2 |
| Proband 4 | Spätschicht | Reduktion | 0,5 |
| Proband 5 | Spätschicht | Dopraum | 0,5 |
| Proband 6 | Nachtschicht | Reduktion | 1 |

¹⁾ beschreibt den persönlichen Arbeitsschutz (Tragen der Maske), 1 bedeutet kein Atemschutz wirksam, 0,01 bedeutet: 1% der Aktivitätskonzentration werden eingeatmet (BG 98)

Tabelle 11.2: Arbeitsbedingungen der Probanden

11.4.4 Probenahme

Die Dopkampagne, d.h. der Umgang mit thoriumhaltigem Material, fand während einer Arbeitswoche vom 04.05.1998 bis zum 08.05.1998 statt. Am Sonntag den 03.05.1998 (kein Umgang mit Thorium) sollten die Probanden die Probenahme mit einer 24h-Stuhlproben beginnen und bis nach Beendigung der Dopkampagne (Montag, den 11.05.1998) fortsetzen. Pro Teilnehmer ergab dies eine maximale Probenanzahl von neun 24h-Stuhlproben. Das LfU hatte demnach 54 24h-Stuhlproben zu bearbeiten. Nach dem chemischen Aufschluss der Stuhlpro-



ben wurden die Proben halbiert und eine Hälfte zur Analyse an das Bundesamt für Strahlenschutz in Berlin gesandt.

11.5 Ergebnisse

11.5.1 Zuverlässigkeit der Probanden

Die Qualität der gewonnenen Ergebnisse steht und fällt mit der Bereitschaft der Mitarbeiter zur zuverlässigen Probenahme. In Gesprächen vor Ort wurde der direkte Vorgesetzte und die Probanden auf die zu beachtenden Regeln bei der Probenahme hingewiesen. Die Probenahmebehälter wurden erst am Tag vor der Probenahme ausgegeben um vorzeitige Kontaminationen zu verhindern. Am Tag nach der Probenahme wurden die Behälter aller Probanden an einem Ort zentral gesammelt. Auf eine räumliche Trennung der gelagerten Probenahmebehälter zu den Arbeitsplätzen wurde strikt geachtet. Auf die Sauberkeit während der Probenahme (möglichst außerhalb des Betriebes) wurde eindringlich hingewiesen. Bei der Bewertung der Messergebnisse wird eine Kontamination der Probenahmebehälter ausgeschlossen.

Ein Ansatzpunkt, um sich ein Bild über die Zuverlässigkeit der Probenahme zu machen, ist die Auswertung der Feuchtmassen der abgegebenen Stuhlproben. Nach ICRP 23 beträgt die durchschnittliche Ausscheidung über den Stuhl für die männliche Referenzperson 135 g/d. In Tabelle 11.3 sind die Feuchtmassen der 54 analysierten Stuhlproben aufgeführt.



| Proband | Feuchtmassen [g] (Ø/ Max. / Min.) | Bemerkungen |
|---------|--------------------------------------|--|
| 1 | 77 / 143 / 14 | Neun Stuhlproben abgegeben, drei Stuhlproben (09.05.98, 10.05.98, 11.05.98) waren nicht eindeutig gekennzeichnet - d.h. eine eindeutige Zuordnung zum Probenahmetag ist nicht möglich, niedrige mittlere Feuchtmasse und zwei Tagesstuhlproben mit Feuchtmassen unter 50 g |
| 2 | 244 / 374 / 177 | Neun Stuhlproben abgegeben, Zuordnung eindeutig |
| 3 | 141 / 209 / 78 | Neun Stuhlproben abgegeben, Zuordnung eindeutig |
| 4 | 333 / 425 / 218 | Neun Stuhlproben abgegeben, Zuordnung eindeutig |
| 5 | 131 / 140 / 71 | Neun Stuhlproben abgegeben, Zuordnung eindeutig |
| 6 | 142 / 283 / 56 | Neun Stuhlproben abgegeben, Zuordnung eindeutig |

Tabelle 11.3: Feuchtemassen der 24h-Stuhlproben

Zuordnungen, Feuchtmassen und Aussagen des Vorgesetzten lassen eine zuverlässige Mitarbeit der Probanden 2 bis 6 vermuten. Die mittlere Feuchtmasse des Probanden 1 gibt zu Zweifeln an der gewissenhaften Sammlung Anlass. Drei Proben des Probanden 1 konnten wegen fehlender Kennzeichnung nicht eindeutig zugeordnet werden.

11.5.2 Nuklidverhältnis der Thoriumverbindungen

Wichtiges Kriterium zur Beurteilung der Ausscheidungsanalysen ist die Kenntnis des Nuklidvektors im Ausgangsmaterial. Hierzu wurden Messpräparate aus den Thoriumverbindungen hergestellt, mit denen während der Dopkampagne umgegangen wurde.

Auf die Zugabe von Th 229-Tracer wurde bei der Aufbereitung der Proben verzichtet.

| Probe | Th 232 : Th 228 : Th 230 | Th 228 : Th 232 |
|------------------------------------|--------------------------|-----------------|
| Thoriumnitrat (Dopraum) | 8 : 3,5 : 1 | 0,4 |
| Thoriertes Wolframoxid (Reduktion) | 6,8 : 2,8 : 1 | 0,4 |

Tabelle 11.4: Nuklidvektor der eingesetzten Thoriumverbindungen

11.5.3 Ergebnisse der Stuhlanalysen

Die Stuhlproben wurden nach dem in Kapitel 6 beschriebenen Verfahren zur Aufbereitung von Stuhlproben verarbeitet. Vier Stuhlproben konnten aufgrund der schlechten chemischen Ausbeute nicht ausgewertet werden. Diese Ergebnislücken konnten mit den Ergebnissen des Bundesamtes für Strahlenschutz in Berlin gefüllt werden. Eine Probe des Probanden 1 ging beim nasschemischen Aufschluss verloren. Hier liegt kein Ergebnis vor.

Die Übereinstimmung zwischen den Aktivitätsbestimmungen des LfU und des Bundesamtes für Strahlenschutz ist gut. In folgenden Tabellen und Grafiken werden die Ergebnisse des LfU aufgeführt.

Die Blindwerte für die radiochemische Aufbereitung der Stuhlproben sind bei den Messwerten nicht berücksichtigt.

| | Ausscheidung [mBq/d] | | | Th 228 / Th 232 | | Ausscheidung [mBq/d] | | | Th 228 / Th 232 | |
|-----------|----------------------|--------|--------|-----------------------|-----------|----------------------|--------|--------|-----------------------|------|
| | Th 228 | Th 230 | Th 232 | | | Th 228 | Th 230 | Th 232 | | |
| Proband 1 | | | | | Proband 4 | | | | | |
| 1) | So | 48,6 | 10,6 | 11,9 | 4,1 | So | 58,7 | 18,1 | 6,6 | 8,9 |
| | Mo | 16,6 | 4,4 | 10,2 | 1,6 | Mo | 92,6 | 27,5 | 135,5 | 0,7 |
| | Di | 32,4 | 6,7 | 15,2 | 2,1 | Di | 65,2 | 12,9 | 54,7 | 1,2 |
| | Mi | | | | | Mi | 66,3 | 24,2 | 100,3 | 0,7 |
| | Do | 51,6 | 16,3 | 68 | 0,8 | Do | 152,2 | 49,1 | 163,3 | 0,9 |
| | Fr | 4,9 | 3,6 | 4,7 | 1,0 | Fr | 51,6 | 17,8 | 33,1 | 1,6 |
| | Sa | 5,4 | 2 | 2,4 | 2,3 | Sa | 85,4 | 30,2 | 41,4 | 2,1 |
| | So | 2,5 | 1,7 | 2,7 | 0,9 | So | 49,4 | 9,9 | 16,8 | 2,9 |
| | Mo | 62,9 | 21 | 66,8 | 0,9 | Mo | 34,9 | 10 | 19,1 | 1,8 |
| Proband 2 | | | | | Proband 5 | | | | | |
| 1) | So | 94,7 | 14,8 | 7,2 | 13,2 | So | 38,9 | 14,1 | 2 | 19,5 |
| | Mo | 42,3 | 11,7 | 37,6 | 1,1 | Mo | 11,4 | 4,8 | 5,8 | 2 |
| | Di | 38,9 | 13,8 | 28,2 | 1,4 | Di | 41,6 | 10,8 | 30,8 | 1,4 |
| | Mi | 47,3 | 11,4 | 35,9 | 1,3 | Mi | 40,2 | 15,3 | 36,1 | 1,1 |
| | Do | 65,8 | 11,6 | 57,8 | 1,1 | Do | 80,1 | 20 | 86,7 | 0,9 |
| | Fr | 77,2 | 11,2 | 37,7 | 2,0 | Fr | 31,1 | 5,6 | 20,0 | 1,6 |
| | Sa | 48 | 8,8 | 26,7 | 1,8 | Sa | 34,3 | 7,7 | 24,5 | 1,4 |
| | So | 48,3 | 13,4 | 18,5 | 2,6 | So | 12,3 | 6,4 | 10,4 | 1,2 |
| | Mo | 44,2 | 12,9 | 14,4 | 3,1 | Mo | 47,9 | 18,9 | 77,1 | 0,6 |
| Proband 3 | | | | | Proband 6 | | | | | |
| 1) | So | 30,7 | 8,2 | 4,0 | 7,7 | So | 28,8 | 9,6 | 2 | 14,4 |
| | Mo | 17,6 | 3,3 | 4,0 | 4,4 | Mo | 27,9 | 4,8 | 3,3 | 8,5 |
| | Di | 38,9 | 14,8 | 15,4 | 2,5 | Di | 21 | 4,5 | 5,2 | 4,0 |
| | Mi | 53,8 | 19,4 | 24,0 | 2,2 | Mi | 24,5 | 4,4 | 7,8 | 3,1 |
| | Do | 26,7 | 7,2 | 18,1 | 1,5 | Do | 31,9 | 8,1 | 13,4 | 2,4 |
| | Fr | 45,6 | 15,0 | 36,0 | 1,3 | Fr | 23,3 | 6,8 | 29,3 | 0,8 |
| | Sa | 62,2 | 23,4 | 124,3 | 0,5 | Sa | 74,4 | 17 | 63,7 | 1,2 |
| | So | 90,4 | 18,1 | 61,7 | 1,5 | So | 61,2 | 17,6 | 70,8 | 0,9 |
| | Mo | 30,6 | 5,7 | 9,2 | 3,3 | Mo | 12,4 | 2,9 | 4,3 | 2,9 |

1) Messwerte des BfS, Berlin

Tabelle 11.5: Zusammenfassung der Messwerte der sechs Probanden

11.6 Bewertung der Messergebnisse

11.6.1 Natürlicher Thoriumanteil in der Stuhlprobe

Die Probenahme wurde am Tag vor dem eigentlichen Umgang mit Thorium begonnen, um einen Anhaltspunkt für die natürliche Thoriumausscheidung des Probanden zu erhalten. Die Ergebnisse der Stuhlproben, die im Anschluss an die Dopkampagne genommen wurden, können nicht als natürliche Ausscheidung angesetzt werden, da in ihnen Anteile eventuell vorgekommener Inkorporationen enthalten sind.

| Proband | Th 228 [mBq/d] | Th 230 [mBq/d] | Th 232 [mBq/d] | (Frindik, 1983) (Aki 93) |
|--------------------|-------------------|-------------------|-------------------|--|
| 1 | 48,6 | 10,6 | 11,9 | Th 228: 46 mBq/d Th 230: 9,4 mBq/d Th 232: 5,9 mBq/d |
| 2 | 94,7 | 14,8 | 7,2 | |
| 3 | 30,7 | 8,2 | 4,0 | |
| 4 | 58,7 | 18,1 | 6,6 | |
| 5 | 38,9 | 14,1 | 2,0 | |
| 6 | 28,8 | 9,6 | 2,0 | |
| Mittel ± Stabw. | 50,1 ± 22,4 | 12,6 ± 3,4 | 5,6 ± 3,5 | |

Tabelle 11.6: Angenommene natürliche Ausscheidung (aus erster Stuhlprobe)

Die gemittelten Werte der täglichen Ausscheidung liegen im Bereich der zitierten Literaturwerte. Sie werden als Referenz für die folgende Arbeitswoche angesetzt.

11.6.2 Vergleich der Messwerte mit natürlicher Ausscheidung

| Proband | nat. Ausscheidung Th 232 | | Mo - Sa | Faktor |
|-----------------|---------------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| | Messwert [mBq/d] (Tabelle 11.6) | Berechnet ²⁾ [mBq/6d] | Summe Messwerte [mBq/6d] | Messung / Abschätzung |
| 1 ¹⁾ | 11,9 | 71,4 | 100,5 | 1,4 |
| 2 | 7,2 | 43,2 | 223,9 | 5,2 |
| 3 | 4,0 | 24,0 | 221,8 | 9,2 |
| 4 | 6,6 | 39,6 | 528,3 | 13,3 |
| 5 | 2,0 | 12,0 | 203,9 | 17,0 |
| 6 | 2,0 | 12,0 | 122,7 | 10,2 |

¹⁾ Fehlende Probe unberücksichtigt

²⁾ Hochrechnung auf 6 Tage natürlicher Ausscheidung

Tabelle 11.7.: Überschreitungen der angesetzten natürlichen Ausscheidung

In Tabelle 11.7 wird die Th 232-Ausscheidung aus Tabelle 11.6 als angenommene natürliche Ausscheidung für die Tage der folgenden Arbeitswoche der Probanden angesetzt. Beim Vergleich mit den ermittelten Messwerten zeigt sich eine deutliche Überhöhung bis um den Faktor 17 gegenüber der abgeschätzten Ausscheidung (Werte jeweils Montag bis einschließlich Samstag). Betrachtet man den Verlauf von Th 232 bei den Probanden 1-6 so stellt man fest, dass die angenommene natürliche Ausscheidung an allen folgenden Tagen überschritten wird.

11.6.3 Absolutwerte und Nuklidvektor

Neben dem Vergleich mit der individuellen täglichen Th-Ausscheidung bieten sich noch andere Möglichkeiten zur Beurteilung der Messwerte an. In Kapitel 3 wurden diese Kriterien näher vorgestellt.

Beim Vergleich mit einer angesetzten Maximalausscheidung von 20 mBq Th 232/d über Stuhl wird bei 27 der 54 Tagesproben eine Überschreitung festgestellt. Bei Betrachtung des Nuklidvektors ($\text{Th 228} / \text{Th 232} < 1$) kann bei 11 der 54 Proben auf eine beruflich bedingte Inkorporation



ration geschlossen werden (Tabelle 11.8). Bei 10 dieser 11 Proben zeigt sich dabei gleichzeitig eine Überschreitung des Maximalwertes der natürlichen Th 232 Ausscheidung.

| | Ausscheidung [mBq/d] | | | Th 228 / Th 232 | | Ausscheidung [mBq/d] | | | Th 228 / Th 232 | | |
|-----------|----------------------|--------|--------|-----------------------|------------|----------------------|--------|--------|-----------------------|--------------|------------|
| | Th 228 | Th 230 | Th 232 | | | Th 228 | Th 230 | Th 232 | | | |
| Proband 1 | | | | | Proband 4 | | | | | | |
| → | So | 48,6 | 10,6 | 11,9 | 4,1 | → | So | 58,7 | 18,1 | 6,6 | 8,9 |
| | Mo | 16,6 | 4,4 | 10,2 | 1,6 | | Mo | 92,6 | 27,5 | 135,5 | 0,7 |
| | Di | 32,4 | 6,7 | 15,2 | 2,1 | | Di | 65,2 | 12,9 | 54,7 | 1,2 |
| | Mi | | | | | | Mi | 66,3 | 24,2 | 100,3 | 0,7 |
| | Do | 51,6 | 16,3 | 68 | 0,8 | | Do | 152,2 | 49,1 | 163,3 | 0,9 |
| | Fr | 4,9 | 3,6 | 4,7 | 1,0 | | Fr | 51,6 | 17,8 | 33,1 | 1,6 |
| | Sa | 5,4 | 2 | 2,4 | 2,3 | | Sa | 85,4 | 30,2 | 41,4 | 2,1 |
| | Mo | 62,9 | 21 | 66,8 | 0,9 | | Mo | 34,9 | 10 | 19,1 | 1,8 |
| Proband 2 | | | | | Proband 5 | | | | | | |
| → | So | 94,7 | 14,8 | 7,2 | 13,2 | → | So | 38,9 | 14,1 | 2 | 19,5 |
| | Mo | 42,3 | 11,7 | 37,6 | 1,1 | | Mo | 11,4 | 4,8 | 5,8 | 2 |
| | Di | 38,9 | 13,8 | 28,2 | 1,4 | | Di | 41,6 | 10,8 | 30,8 | 1,4 |
| | Mi | 47,3 | 11,4 | 35,9 | 1,3 | | Mi | 40,2 | 15,3 | 36,1 | 1,1 |
| | Do | 65,8 | 11,6 | 57,8 | 1,1 | | Do | 80,1 | 20 | 86,7 | 0,9 |
| | Fr | 77,2 | 11,2 | 37,7 | 2,0 | | Fr | 31,1 | 5,6 | 20,0 | 1,6 |
| | Sa | 48 | 8,8 | 26,7 | 1,8 | | Sa | 34,3 | 7,7 | 24,5 | 1,4 |
| | So | 48,3 | 13,4 | 18,5 | 2,6 | | So | 12,3 | 6,4 | 10,4 | 1,2 |
| | Mo | 44,2 | 12,9 | 14,4 | 3,1 | | Mo | 47,9 | 18,9 | 77,1 | 0,6 |
| Proband 3 | | | | | Proband 6 | | | | | | |
| → | So | 30,7 | 8,2 | 4,0 | 7,7 | → | So | 28,8 | 9,6 | 2 | 14,4 |
| | Mo | 17,6 | 3,3 | 4,0 | 4,4 | | Mo | 27,9 | 4,8 | 3,3 | 8,5 |
| | Di | 38,9 | 14,8 | 15,4 | 2,5 | | Di | 21 | 4,5 | 5,2 | 4,0 |
| | Mi | 53,8 | 19,4 | 24,0 | 2,2 | | Mi | 24,5 | 4,4 | 7,8 | 3,1 |
| | Do | 26,7 | 7,2 | 18,1 | 1,5 | | Do | 31,9 | 8,1 | 13,4 | 2,4 |
| | Fr | 45,6 | 15,0 | 36,0 | 1,3 | | Fr | 23,3 | 6,8 | 29,3 | 0,8 |
| | Sa | 62,2 | 23,4 | 124,3 | 0,5 | | Sa | 74,4 | 17 | 63,7 | 1,2 |
| | So | 90,4 | 18,1 | 61,7 | 1,5 | | So | 61,2 | 17,6 | 70,8 | 0,9 |
| | Mo | 30,6 | 5,7 | 9,2 | 3,3 | | Mo | 12,4 | 2,9 | 4,3 | 2,9 |

→: Datensätze mit Th 228 / Th 232 ≤ 1 □ : Datensätze mit Th 232 ≥ 20 mBq/d

Tabelle 11.8: Zusammenfassung der Messwerte der sechs Probanden mit Bewertung

Auffallend ist bei allen Probanden außerdem eine deutliche Abnahme des Th 228/Th 232 Verhältnisses unmittelbar nach Beginn der Dopkampagne (Abbildung 11.6).

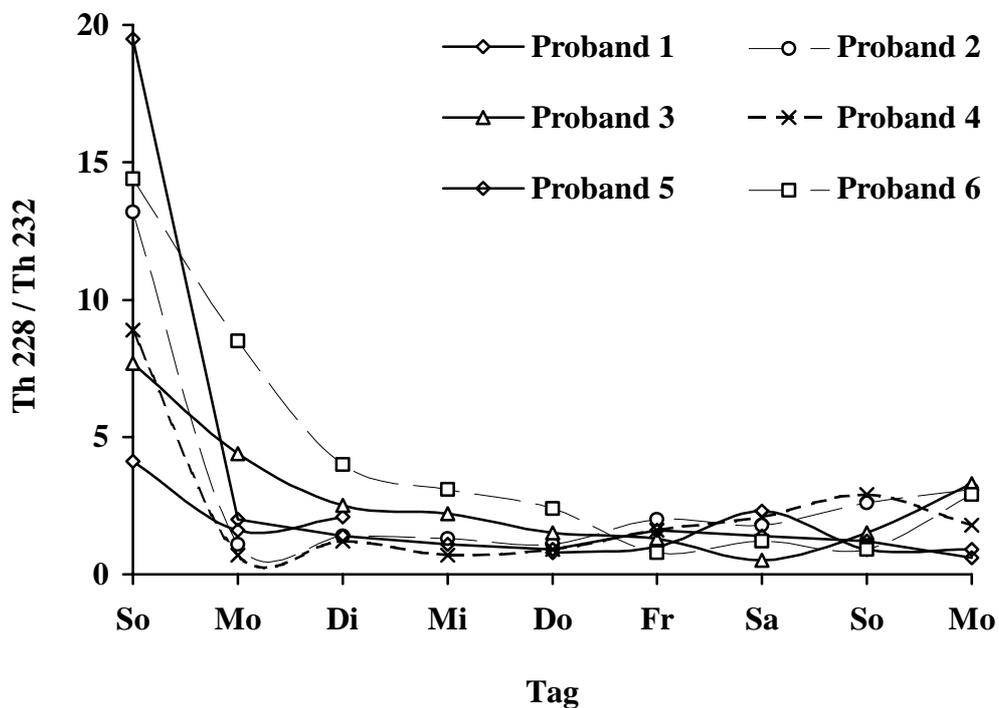


Abbildung 11.6: Verlauf des Th 228 / Th 232 - Quotienten bei den sechs Probanden

In den folgenden Abbildungen ist der Messwertverläufe der beiden Thoriumnuklide Th 228 und Th 232 über den gesamten Zeitraum der Probenahme für die sechs Probanden dargestellt. Auffallend ist dabei der ähnliche Kurvenverlauf von Th 228 und Th 232 nach Beginn der Dopkampagne bei allen sechs Probanden als möglicher Indikator auf eine Inkorporation durch Ingestion oder Inhalation.

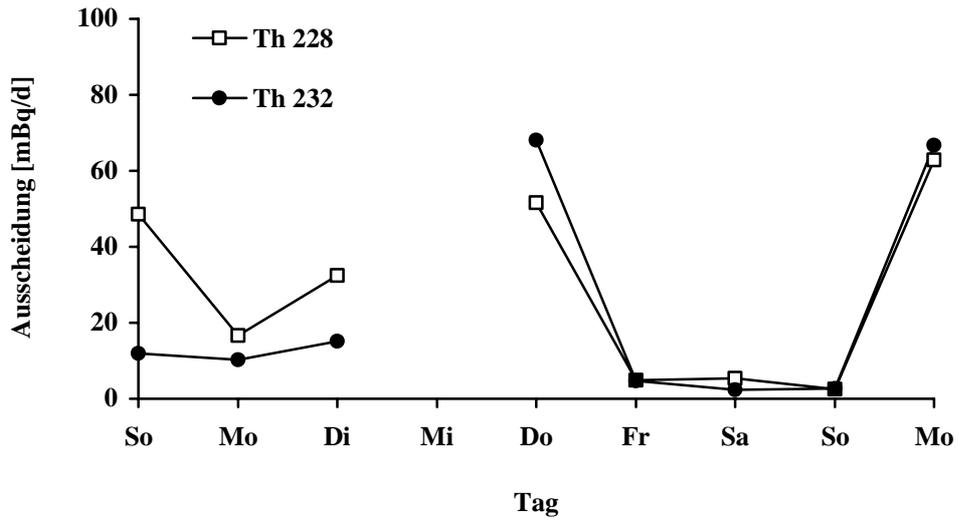


Abbildung 11.7: Messwerte Proband 1

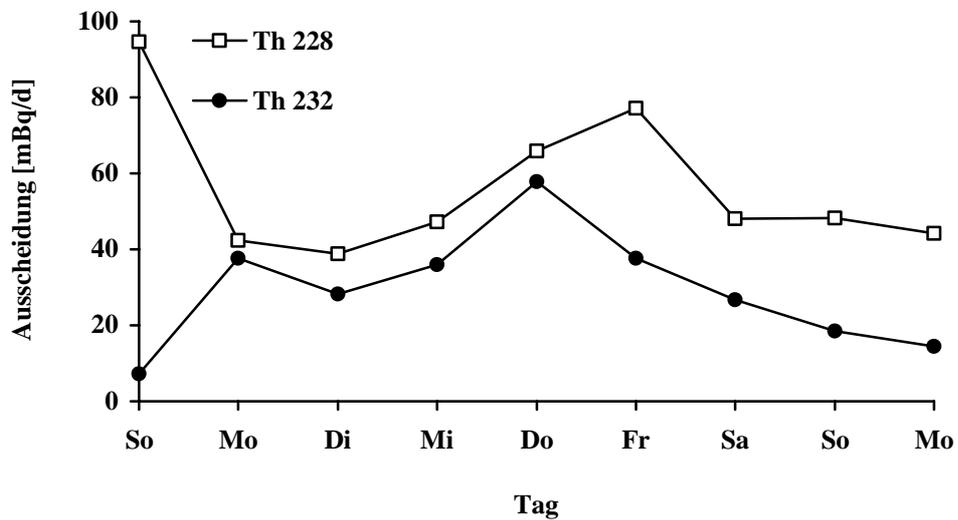


Abbildung 11.8: Messwerte Proband 2

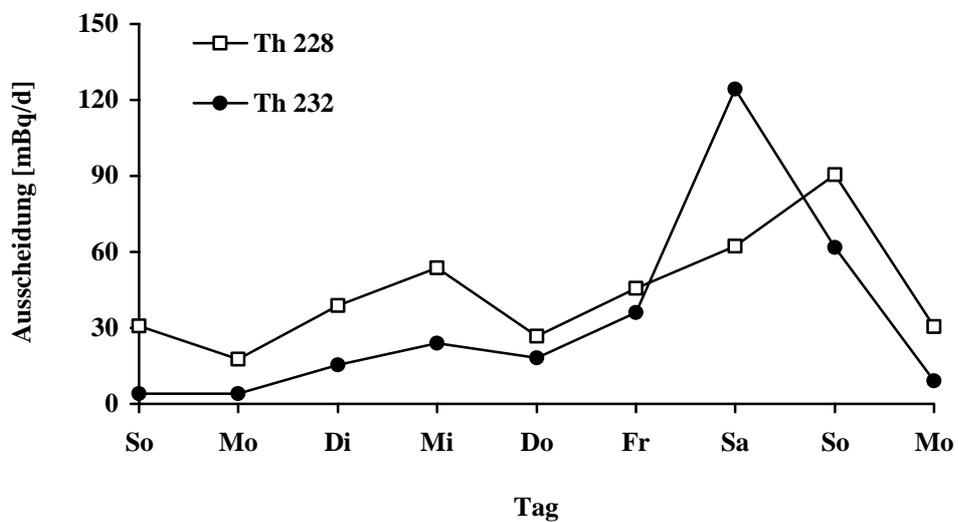


Abbildung 11.9: Messwerte Proband 3

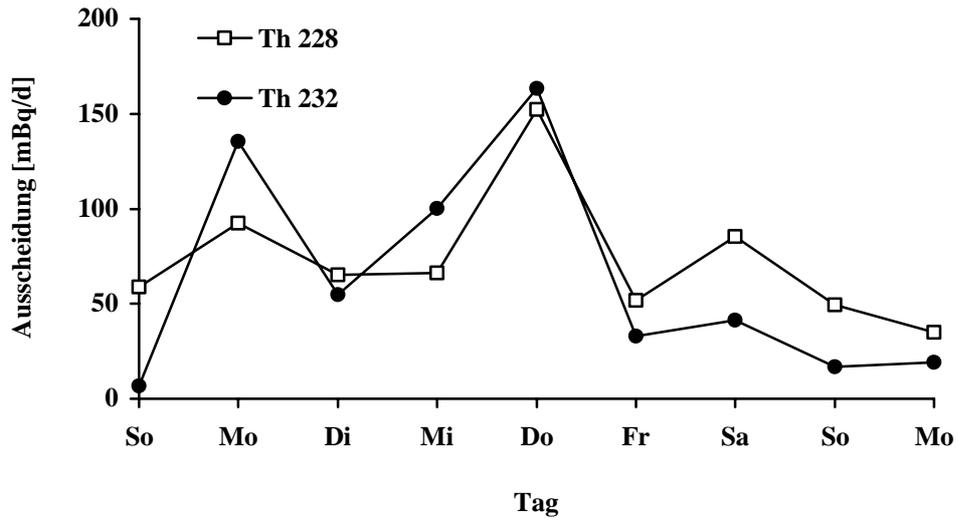


Abbildung 11.10: Messwerte Proband 4

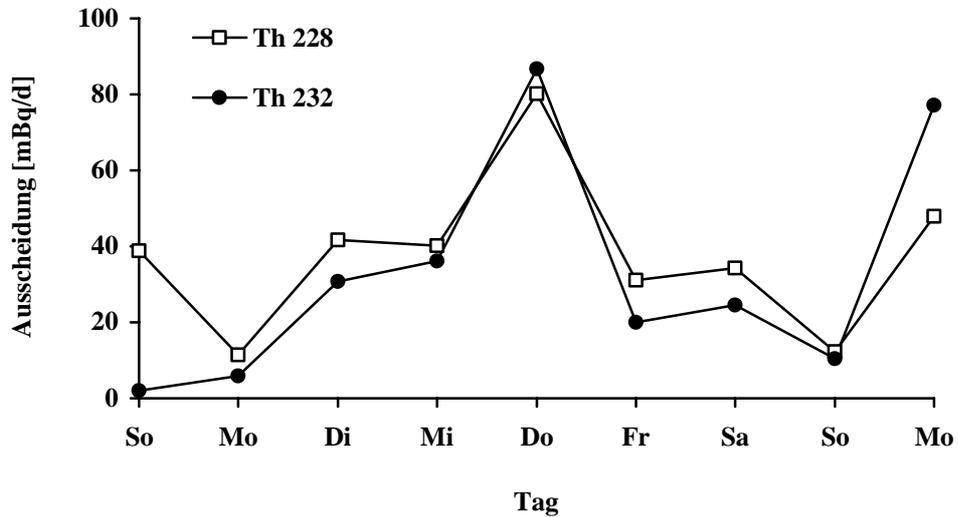


Abbildung 11.11: Messwerte Proband 5

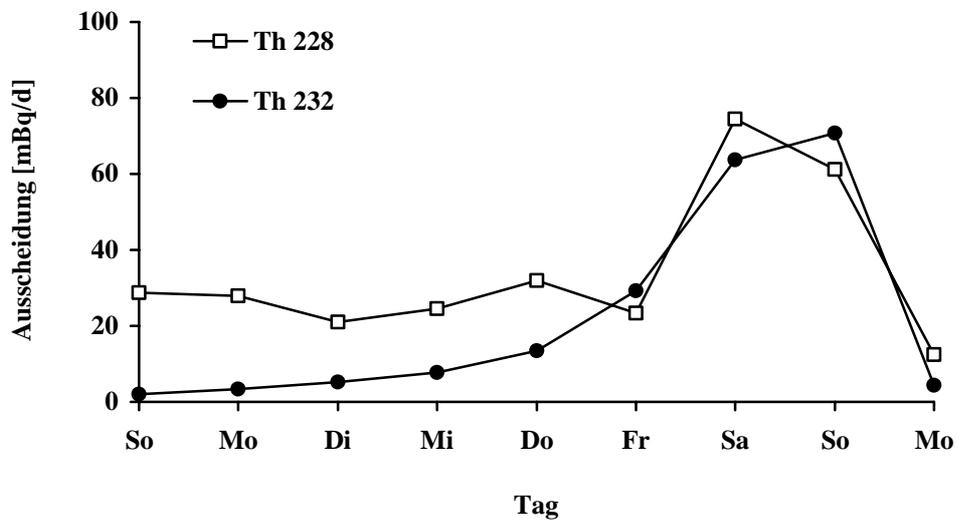


Abbildung 11.12: Messwerte Proband 6

11.6.4 Verfahren nach Schupfner

Ein weiteres Verfahren zur Beurteilung ausgeschiedener Thoriumaktivitäten hat Schupfner vorgeschlagen (Schu 98). Es basiert auf Untersuchungen beruflich exponierter (6 Personen mit insgesamt 12 Tagesstuhlproben) und nicht exponierter Personen (3 Personen mit insgesamt 24 Tagesstuhlproben). Kernpunkt ist dabei der Vergleich der Messwerte mit festgelegten Schwellenwerten für die Einzelnuklide Th 230 und Th 232 sowie für die Nuklidvektoren von Th 230 / Th 232 und Th 228 / Th 232. Die Schwellenwerte wurden dabei aus den Aktivitätsbestimmungen der nicht exponierten Personen ermittelt.

Durch eine Gegenüberstellung der Messwerte und der Nuklidvektoren mit den festgelegten Schwellenwerten soll eine Aussage über eine für den Einzelfall vorliegende Inkorporation getroffen werden können. Die statistische Wahrscheinlichkeit für eine Fehleinschätzung liegt dabei bei 10 %. Schupfner geht dabei von Schwellenwerten für die natürliche Ausscheidung von Th 230 und Th 232 aus, die unter den Mittelwerten der hier ermittelten Werte liegen (Tabelle 11.9). Dementsprechend liegen auch die Aktivitätsverhältnisse von Th 228 / Th 232 und Th 230 / Th 232 unter den festgesetzten Schwellenwerten.

| | Th 230 | Th 232 | Th 228 / Th 232 | Th 230 / Th 232 |
|--|----------------------|---------------------|-----------------------|-----------------------|
| Schwellenwerte ¹⁾ (Schu 98) | 6,1 | 2,9 | 17,4 | 3,8 |
| Mittelwerte ²⁾ | 11,8 (8,2 - 18,1) | 4,8 (2,0 - 11,9) | 10,3 | 2,5 |

¹⁾ Schwellenwerte gemäß Schupfner (Schu 98)

²⁾ Proben vom 04.05.98 korrigiert mit Blindwert

Tabelle 11.9.: Schwellenwerte nach Schu 98 im Vergleich mit der nat. Ausscheidung der Probanden

Wie Tabelle 11.9. zeigt werden die Schwellenwerte der Aktivitätskonzentration, die Schupfner angibt im Mittel von den Nullproben der Probanden bereits deutlich überschritten und die der Nuklidverhältnisse unterschritten. Für die Bewertung der vorliegenden 54 Stuhlproben erscheint sein Verfahren daher nicht geeignet zu sein.



11.6.5 Zusammenfassung

Abhängig vom gewählten Kriterium zum Nachweis einer erfolgten beruflich bedingten Inkorporation kann bei folgenden Proben eine Inkorporation über Ingestion oder Inhalation angenommen werden:

| | |
|---|---------------------|
| 1. Messwert Th 232 > individueller Nullwert vom 04.05.99: | 43 Proben = 91,5% |
| 2. Th 232 > 20 mBq | : 27 Proben = 57,4% |
| 3. Th 228 / Th 232 ≤ 1 | : 11 Proben = 23,4% |
| 4. Th 232 > 20 mBq und Th 228 / Th 232 ≤ 1 | : 10 Proben = 21,3% |

| | | |
|--------------|------------------------------|---|
| Erläuterung: | Gesamtanzahl Proben: | 54 |
| | Anzahl Nullproben: | 6 |
| | Anzahl ausgefallener Proben: | 1 |
| | Restanzahl Proben: | 47 = Proben für Inkorporationsüberwachung |

In der Reihenfolge der Kriterien von 1 bis 4 nimmt die Sicherheit zu, mit der von einer beruflich bedingten Aufnahme von Thorium ausgegangen werden kann.

11.7 Diskussion der Ergebnisse

Wichtig für die Zufuhrberechnung und die Abschätzung der Dosis ist die Kenntnis der Inkorporationsart. Dominiert eine Aktivitätszufuhr über Ingestion, so sind wegen der schnellen Ausscheidung über den Magen-Darm-Trakt die Folgedosen gering. Aufgrund der nicht unbedeutenden Anteile des durch die Nahrung zugeführten Thoriums und seiner starken individuellen und zeitlichen Schwankungen, sind Stuhluntersuchungen zur Bestimmung der Inhalationszufuhr nicht gut geeignet. Die ermittelten Ergebnisse können deshalb nicht unabhängig von den anderen Messmethoden betrachtet werden.

Die Einzelergebnisse der beteiligten Institutionen an der Messkampagne werden innerhalb dieser Arbeit nicht vorgestellt. Es soll jedoch erwähnt werden, dass in den 24h-Urinproben sowie bei den Exhalationsmessungen der beteiligten sechs Probanden keine oder nur geringe Thoriumaktivitäten knapp über der Erkennungsgrenze ermittelt wurden (Eis 98).



Bei einer Zwischenbesprechung der teilnehmenden Messstellen wurden die vorliegenden Ergebnisse diskutiert. Ausgehend von einer viertägigen Aktivitätszufuhr über Inhalation ergaben Berechnungen auf der Grundlage der ICRP 66 und der ICRP 69 Inkorporationen von lediglich 0,5 bis 3 Bq Thorium (Noß 98).

Als problematisch erweist sich die Zuordnung des inhalierten Thoriums zur entsprechenden chemischen Klasse. Die Ausscheidungsdaten lassen auf eine vorwiegende Inkorporation der Retentionsklasse M schließen. Von größerer Bedeutung für die Zufuhrberechnung ist die Bestimmung des korrekten AMAD. Durch die Annahme eines zu kleinen AMAD kann dabei die Zufuhr erheblich überschätzt werden. Realistisch erscheint ein AMAD von 10 µm (Noß 98).

In der folgenden Tabelle werden exemplarisch für zwei Proben eigene Berechnungen der Aufnahme und der Effektivdosen auf der Basis von ICRP 54 wiedergegeben.

| Proband / Probe vom | Inhalation | | | Ingestion | | |
|---|--------------|------------------|--------------------------------|--------------|------------------|--------------------------------|
| | Zufuhr [mBq] | Eff.-Dosis [mSv] | Org.-Dosis [mSv] ³⁾ | Zufuhr [mBq] | Eff.-Dosis [mSv] | Org.-Dosis [mSv] ³⁾ |
| 4 / Montag den 04.05 (ein Tag Zufuhr) ¹⁾ | 2640 | 0,8 | 1,3 | 480 | 0,00036 | 0,0086 |
| 6 / Sonntag den 10.05 (vier Tage Zufuhr) ²⁾ | 700 | 0,2 | 0,4 | 400 | 0,0003 | 0,0073 |

1) Messwert Ausscheidung Th 232 135,5 mBq/d

2) Messwert Ausscheidung Th 232 70,8 mBq/d

3) Knochenoberfläche

Tabelle 11.10: Abschätzung von Zufuhr und Dosis nach ICRP 54 für Th 232 (AMAD 1 µm, Lungenretentionsklasse Y)

Dosisrelevant ist das Th 232. Legt man das Isotopenverhältnis von Th 228, Th 230 und Th 232 des Thoriumnitrates (siehe Tabelle 11.4) zugrunde, so erhöht sich die durch Inhalation bei der Dopkampagne inkorporiertes Thorium verursachte Effektivdosis um ca. 42% und die Knochenoberflächendosis um ca. 9 %. Bei Ingestion betragen die entsprechenden Werte 25 % und 21 %.

Eine strikte Trennung der Arbeitsgänge (Umgang mit Thoriumnitrat im Dopraum, Umgang mit Thoriumoxid in der Reduktion) konnte nicht gewährleistet werden. Damit ist eine Zuordnung der inkorporierten Aktivitäten zur entsprechenden Thoriumverbindung nicht fehlerfrei



möglich. Mit drei Th 232 Messwerten > 100 mBq/d weist Proband 4 die höchsten Werte auf. Dieser war hauptsächlich in der Reduktion beschäftigt. Subtrahiert man von den Mittelwerten der 3 genannten Proben für Th 228, Th 230 und Th 232 die Werte der mittleren natürlichen Th-Ausscheidung gemäß Tabelle 11.6 ergibt sich für das, das durch den Umgang inkorporiert wurde ein Isotopenverhältnis Th 232:Th 228:Th 230 von 6,1:2,5:1. Dieses Verhältnis liegt nahe bei dem für thoriertes Wolframoxid ermittelte von 6,8:2,8:1 (Tabelle 11.4). Trotz äußerster Sorgfalt bei der Unterweisung der Probanden und bei der Lagerung der Probenahmebehälter kann eine äußere Kontamination der Probenahmebehälter nicht mit letzter Sicherheit ausgeschlossen werden.

Zwischen den abgeschätzten Maskenfaktoren der Probanden (siehe Tabelle 11.2) und der Höhe der ausgeschiedenen Thoriumaktivitäten ist kein Zusammenhang erkennbar. Dieser Befund deutet auf Ingestion als Hauptzufuhrpfad hin.



12 Literatur

- AKI 93 ARBEITSKREIS INKORPORATIONSÜBERWACHUNG;
Inkorporationsüberwachung auf Thorium; Loseblattsammlung des
Arbeitskreises Inkorporationsüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz,
FS-93-69-AKI; Neuherberg November 1993
- Aut 91 AUTOMESS Automation und Messtechnik GmbH; Szintomat 6134 -
Beschreibung und Bedienungsanleitung; 1991
- Bec 91 BECKER D.E., REICHEL T. A.; Anthropogene Stoffe und Produkte mit
natürlichen Radionukliden, Teil 1 -Überblick über die wichtigsten
Expositionspfade, Studie im Auftrag des Bayerischen Staatsministerium
für Landesentwicklung und Umweltfragen; TÜV Bayern e.V.; München 1991
- Ber 94 BERBER J., KACHER H., LANGER R.; Physik in Formeln und Tabellen; 7.
durchgesehene Auflage; ISBN 3-519-03200-7; Teubner-Verlag; Stuttgart 1994
- Ber 98 BERGER C.D., KELLY B.A., VENEZIA C.; Managing metabolic model
deficiencies for routine radiation protection purposes at a thorium dioxide
facility; Health Physics 74: 259ff; 1998
- Bey 98-1 BEYER D., RIEDEL W.; Der natürliche Thoriumgehalt des Menschen und
seiner Ausscheidungen -Übersicht über verfügbare Daten-; Bundesamt für
Strahlenschutz; BfS-Bericht BfS-ISH-183/98: 4ff; ISBN 3-89701-155-7;
Neuherberg März 1998
- Bey 98-2 BEYER D., DALHEIMER A., RIEDEL W., NEUDERT M.; Die Bedeutung
der natürlichen Ausscheidung bei der Inkorporationsüberwachung auf U 238,
Th 232, Sr 90 und Ra 226; Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1:
210ff ; ISBN 3-8249-0494-2; TÜV-Verlag GmbH; Köln 1998
- BG 97 LUDWIG T., SEITZ G.; Freisetzung radioaktiver Stoffe beim WIG-
Schweißen mit thoriumhaltigen Elektroden; Berufsgenossenschaft der
Feinmechanik und Elektrotechnik, Institut für Strahlenschutz; IFS-
Schriftenreihe 1/97; Köln Januar 1997
- BGR 76 BUNDESANSTALT FÜR GEOWISSENSCHAFTEN UND ROHSTOFFE;
Programmstudie Geowissenschaften und Bergbau - erstellt im Rahmen des
Rahmenprogramms Rohstoffforschung des BMFT; 1976
- Bre 52 BRESLIN A., HARRIS W.B.; Use of thoriated tungsten electrodes in inert gas
shielded arc welding-investigation of potential hazard; Industrial Hygiene
Brand, Health and Safety Division, New York, Operation Office; US Atomic
Energy Commission; Industrial Hygiene Quarterly; Dezember 1995
- Bun 89 Bekanntmachung der Dosisfaktoren, Teil III, Bundesanzeiger, Jahrgang 41, Nr.
185a, vom 30.09.1989



- Dal 98 DALHEIMER A., HARTMANN M., KÖNIG K.; Körperaktivität durch natürliche Quellen, 3. Fachgespräch am 25. und 26. November, Fachbereich Strahlenschutz BfS Berlin; Bundesamt für Strahlenschutz; BfS-Bericht BfS-ISH-183/98: 133; ISBN 3-89701-155-7; Neuherberg März 1998
- Dan 86 DANG H.S.; JAISWAL D.D.; SUNTA C.M.; Daily intake of thorium by an indian population; Sci. Tot. Environ. 57: 73ff; 1986
- Dan 89 DANG H.S., JAISWAL D.D., SUNTA C.M., SOMA S.D.; A sensitive method for the determination of Th in body fluids; Health Phys. 57: 393ff; 1989
- Dan 92 DANG H.S., JAISWAL D.D., MURTHY K.B.S., SHARMA R.C., NAMBIAR P.P.V.J., SUNTA C.M.; Relevance of ICRP metabolic model of thorium in bioassay monitoring; J. Radioanalytical Nucl. Chem. Articles 156: 55ff; 1992
- DIN 74 DIN 1910-1, Schweißen, Blatt 1, Begriffe, Einteilung der Schweißverfahren , Dezember 1974
- Eik 98 EIKENBERG J.; ZUMSTEG I.; RÜTHI M.; BAJO S.; FERN M.J.; Fortschritte in der Alpha-Spektrometrie: Schnelle Low-Level-Analysen von Transuranen in Urin durch Aktinidenextraktion; Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1: 171ff ; ISBN 3-8249-0494-2; TÜV-Verlag GmbH; Köln 1998
- Eis 98 EISENMENGER; Persönliche Mitteilung; 1998
- Fis 87 FISENNE I.M.; PERRY P.M.; DECKER K.; KELLER H.W.; The daily intake of U 234, U 235, U 238, Th 228, Th 230, Th 232 and Ra 226, Ra 228 by New York city residents; Health Phys. 53:357ff; 1987
- Fis 98 FISCHBACH G.; Ausscheidungsdaten von Uran im Urin; 3. Fachgespräch am 25. und 26. November, Fachbereich Strahlenschutz BfS Berlin; Bundesamt für Strahlenschutz; BfS-Bericht BfS-ISH-183/98: 65ff; ISBN 3-89701-155-7; Neuherberg März 1998
- Frin 96 FRINDIK O.; Essentielle und Toxische Inhaltsstoffe in der täglichen Gesamtnahrung; Bundesforschungsanstalt für Ernährung; BFE-Bericht R-83-02: 302 ff & 313 ff; 1983
- GMBI 94 Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen (§§ 62, 63, 63a StrlSchV), GMBI 1994 Nr.7
- Hau 92 HAUG K.-H.; Schriftliche Mitteilung an Didier-Werke - Ergebnis der nuklidspezifischen Aktivitätsbestimmungen; März 1991
- ICRP 23 ICRP No. 23: Report of the Task Group of Reference Man, International Commission on Radiological Protection, Publication No. 23, Pergamon Press, Oxford, 1975



- ICRP 30 ICRP No. 30: Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, International Commission on Radiological Protection, Publication No. 30, Part 1-4, Pergamon Press, Oxford, 1979-1988
- ICRP 54 ICRP No. 54: Individual Monitoring for Intakes of by Workers: Design and Interpretation, International Commission on Radiological Protection, Publication No. 54, Pergamon Press, Oxford, 1988
- ICRP 66 ICRP No. 66: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection; ; International Commission on Radiological Protection, Publication No. 66, Pergamon Press, Oxford, 1994
- ICRP 69 ICRP No. 69: Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides, Part 3; International Commission on Radiological Protection, Publication No. 69, Pergamon Press, Oxford, 1995
- ICRP 78 ICRP No. 78: Individual Monitoring for Mnternal Exposure of Workers; Re-
placement of Publication 78; Pergamon Press; Oxford, in Druck
- ISH 93 Thorium, Probleme der Inkorporationsüberwachung -Anwendung, Messung, Interpretation-, Bundesamt für Strahlenschutz, ISH-Berichte, ISSN 0937-4558, Neuherberg, September 1993
- Jaq 95 JAQUET C.; Baguettes de Soudure en tungstene thorie et risque radioactif; Arch. mal. prof. 1995 No. 7: 551ff; Aix-les-Bains 1995
- Joh 91 JOHNSTON G.; An evaluation of radiation and dust hazards at a mineral sand processing plant; Health Physics 60: 781ff; 1991
- Kar 96 KARPAS Z.; HALICS L.; MARCO R.; KATORZA E.; LORBER A.; GOLDBART Z.; ICP-MS as a simple, rapid and inexpensive method for determination of uranium in urin, comparison with LIF; Health Phys.71: 879ff; 1996
- Kil 91 KILLING R., Handbuch der Schweißverfahren, Teil 1: Lichtbogenschweißverfahren, überarb. und erw. Aufl., Dt. Verlag für Schweißtechnik, Düsseldorf, 1991
- Kol 85 KOLB W.; Jahreszeitliche Schwankungen des Uran- und Thoriumgehalts in Aerosolen der bodennahen Luft; Fachverband für Strahlenschutz e.V.; FS 85-37-T: 11ff; 1985
- Leg 97 LEGGETT R.W.; Basis and implications of the ICRP's new biokinetic model for thorium; Health Physics 56: 165ff; 1989
- Lins 86 LINSALATA P., EISENBUD M.; Ingestion estimates of Th and the light rare earth elements based on measurements in human faeces; Health Phys. 50: 163ff; 1986



- Lis 91 LISCHINSKY J., VIGLIANI M. A., ALLARD D. J.; Radioactivity in zirconium oxide powders used in industrial applications; Health Physics 60: 859ff, 1991
- Lud 96 LUDWIG T.; Schriftliche Mitteilung; Berufsgenossenschaft der Feinmechanik und Elektrotechnik, Institut für Strahlenschutz; Köln 12.03.1996
- McE 93 MC ELEARNEY; A Study of Thorium Exposure during Tungsten Inert Gas Welding in an Airline Engineering Population; JOM, Volume 35, Number 7, July 1993
- Mei 98 MEIß; Hintergründe zur Verwendung von Thorium in der Lampentechnologie und Strahlenschutz im Werk Schwabmünchen; Schriftliche Mitteilung (Vortragsmanuskript); Schwabmünchen 1998
- Mül 98 MÜLLER D.; Mündliche Mitteilung - Praktikumsarbeit LfU Kulmbach, 1998
- Nau 98 NAUMANN M.; HÄNISCH K.; HARTMANN M.; SCHÖNHERR H.; Natürliche und künstliche Radionuklide in Urin- und Stuhlproben von Personen aus der Bevölkerung; Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1: 216ff; ISBN 3-8249-0494-2; TÜV-Verlag GmbH; Köln 1998
- Noßke 98 NOßKE D.; Modelle der ICRP für die interne Dosimetrie - Stand und Perspektiven; Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1: 253ff ; ISBN 3-8249-0494-2; TÜV-Verlag GmbH; Köln 1998
- Pav 66 PAVLOSKAYA N.A.; Natural content and distribution of thorium in the human organism, N.A.Pavlovskaya, Med. Radiol. 11, 28-30, 1966
- Pic 68 PICER M., STROHAL P.; Determination of Thorium and Uranium in biological materials; Analyt. Chem. Acta 40: 131ff; 1968
- Prau 94 PRAUSE O., MEYER A. R., SCHMITT-THOMAS K.-H. G.; Ermittlung von anwendungsorientierten Schweißbedingungen zur Beschreibung einheitlicher Prüfparameter für Elektroden zum Wolfram-Inertgasschweißen; Deutscher Verlag für Schweißtechnik; Sonderdruck aus Schweißen und Schneiden, Heft 9/94 DVS-Verlag GmbH, Düsseldorf 1994
- Rei 93 REICHEL T. A.; LEHMANN K.-H.; Anthropogene Stoffe und Produkte mit natürlichen Radionukliden, Teil II - Untersuchungen zur Strahlenexposition beim beruflichen Umgang -; Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen (StLMU), 3-910088-10-4, November 1993
- Rie 93 RIEDEL W.; BEYER D.; DALHEIMER A.; DOERFEL H.; HENRICHS K.; SCHELER R.; Inkorporationsüberwachung auf Thorium; Loseblattsammlung des Arbeitskreises Inkorporationsüberwachung (AKI) des Fachverbandes Strahlenschutz e.V.; FS-93-69-AKI; 1993



- Rie 96 RIEDEL W., BEYER D.; Natürliches Thorium in Körperorganen und Ausscheidungen, Vortragsmanuskript 3. Fachgespräch der Leitstelle Inkorporationsüberwachung des BfS -Körperaktivität durch natürliche Quellen; 25./26.11.1996, Berlin
- RÖM 92 RÖMPP CHEMIE LEXIKON; BAND T-Z 9., erw. und bearb. Auflage; Georg Thieme Verlag; ISBN 3-13-735109-X; Stuttgart 1992
- Roth 97 ROTH P.; WERNER E.; WENDLER I.; SCHRAMMEL P.; Variation of natural Th 232 excretion in non exposed persons; J. of. Radio. and Nucl. Chem. 226: 255ff, 1997
- Schu 98 SCHUPFNER R.; Untersuchung zur Unterscheidung zwischen der Inkorporation von Thorium aus natürlichen und berufliche Quellen; Schriftliche Mitteilung; Regensburg Oktober 1998
- Sey 92 SEYMOUR R.; SERGENT F.; KYKER B.; Impact of sensitivity and throughput on optimum selection of a low-background α/β counting system; Radioact. Radiochem. 3: 14ff; 1992
- Shir 92 SHIRAIISHI K., IGARASHI Y., TAKAKU Y., MASUDA K., YOSHIMIZU K., NISHIMURA Y., HONGO S., YAMAGUCHI H.; Daily intakes of Th 232 and U 238 in japanese males; Health Phys. 63: 187ff; 1992
- Sibe 99 SICHERHEITSBEAUFTRAGTER - Ausgabe 1/99; S.6-7; Dr. Curt Haefner Verlag GmbH; Heidelberg Januar 1999
- Sisy 96 INGENIEURBÜRO GRAFFUNDER; Programmpaket SiSy 1.20 Strahlenschutzinformationssystem; Stutensee 1996
- Ste 96 STETZ; persönliche Mitteilung vom 29.05.1996, GWAA München Land
- StrlSchV 89 Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlung (Strahlenschutzverordnung), vom 13. Oktober 1976 in der Fassung der 2. Änderungsverordnung vom 18. Mai 1989, BGBl. I, 943
- Sun 87 SUNTA C.M.; DANG H.S.; JAISWAL D.D.; Thorium in man and environment uptake und clearance; J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 115: 149ff.; 1987
- Wein 93 WEINMÜLLER K.; Thorium in der Lampentechnologie; Thorium, Probleme bei der Inkorporationsüberwachung -Anwendung, Messung, Interpretation-; Bundesamt für Strahlenschutz; BfS-Bericht BfS-ISH-161/93:19ff; Neuheberg September 1993
- ZeI 92 ZEISING; Schriftliche Mitteilung an Didier Werke - Bestimmung spezifischer Aktivitäten von ZrO_2 und $ZrSiO_4$; Januar 1995
- Zin 98 ZINGLER J., PASCHKE M., HILLE R.; Natürliche Zufuhr und Ausscheidung von Thorium und Uran; Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1: 188ff ; ISBN 3-8249-0494-2; TÜV-Verlag GmbH; Köln 1998



ZVEE 96 ZENTRALVERBAND ELEKTROTECHNIK- UND
ELEKTRONIKINDUSTRIE; schriftliche Mitteilung vom 18.06.1996,