

Radioaktivitätsmessung von Wasserproben

K.BUCHELA

Zusammenfassung

Die Radioaktivität von Wasserproben aus unserer Umwelt ist in der überwiegenden Anzahl der Fälle zu gering, um eine direkte Messung in der Probe mit der erwünschten Genauigkeit zu ermöglichen. Es müssen demnach vor der Messung Aufarbeitungsoperationen durchgeführt werden, um eine Konzentrierung der in den Proben enthaltenen Radionuklide zu erreichen. Für Wasserproben kommen dafür Eindampfen, Anreicherung durch Ionenaustauscher oder in speziellen Fällen Elektrolyse in Frage. Gammastrahlende Nuklide werden durch spektrometrische Messung qualitativ und quantitativ bestimmt, bei alpha- oder betastrahlenden Nukliden sind meist zusätzliche Trennoperationen vor der Messung erforderlich. Spezielle Meßverfahren erlauben eine Bestimmung mehrerer Radionuklide nebeneinander in einer Probe. Aus dem Radionuklidgehalt der Wasserproben läßt sich bei Berücksichtigung der möglichen "Belastungspfade" die auf die Bevölkerung wirkende Strahlendosis errechnen. Für die Messung von Wasserproben aus der Donau werden Beispiele angeführt.

Radionuklide in unserer Umwelt

Die Bestimmung radioaktiver Stoffe in unserer Umwelt ist eine wichtige Aufgabe der Umgebungsüberwachung. Neben der Bestimmung von radioaktiven, von toxischen, Stoffen können aber aus Ergebnissen von Radioaktivitätsmessungen Aussagen über Herkunft, Alter und Schicksal eines betrachteten

Materials, z.B. einer Wasserprobe abgeleitet werden, die über das Interessengebiet der reinen Umgebungsüberwachung weit hinausgehen und dem Hydrologen oder dem Geologen wertvolle Informationen vermitteln.

Wir kennen heute eine Vielzahl von "Detektoren", die zum Nachweis radioaktiver Substanzen, zur Messung der ausgesandten Strahlung dienen können. Mit Hilfe dieser Detektoren können wir nicht nur das Vorhandensein einer bestimmten Strahlung wie α -, β - oder γ -Strahlung feststellen, sondern auch Information über die Energie der Strahlen, z.B. über die Wellenlänge einer γ -Strahlung erhalten. Von den bisher bekannten Radionukliden sind alle durch ihre verschiedenen Strahlungsarten und Strahlungsenergien gut voneinander unterscheidbar. Die Bestimmung von Art und Energie einer Strahlung ermöglicht somit eine qualitative Analyse, die Messung der Intensität einer Strahlung eine quantitative Analyse von Radionukliden.

In unserer Umwelt, somit auch in unseren Gewässern, können wir radioaktive Stoffe finden, deren Entstehung drei verschiedene Ursachen hat: Wir finden Radionuklide die bei der Nukleosynthese entstanden sind und eine so lange Halbwertszeit haben, daß sie noch heute in einer Menge vorliegen, die einen Nachweis mit Hilfe der uns zur Verfügung stehenden Instrumente ermöglicht. Dabei handelt es sich um die Nuklide der natürlichen radioaktiven Zerfallsreihe und um langlebige Radioisotope einiger Elemente, wie z.B. Kalium-40, Halbwertszeit $1,28 \cdot 10^9$ a, Rubidium-87, Halbwertszeit $4,7 \cdot 10^{10}$ a.

Außerdem werden durch Kernreaktionen, die als Folge der natürlichen kosmischen Strahlung auftreten, laufend radioaktive Stoffe gebildet (Kohlenstoff-14, Halbwertszeit 5730 a,

Wasserstoff-3, Halbwertszeit 12,26 a). Schließlich hat der Mensch in den letzten Jahrzehnten große Mengen an Radionukliden künstlich erzeugt und in die Umwelt eingebracht (z.B. die Spaltprodukte des Urans).

Ursachen für die Radioaktivität von Wasserproben sind demnach sowohl natürlich vorkommende als auch künstlich hergestellte Radionuklide.

Aufarbeitung von Wasserproben zur Radioaktivitätsmessung

Wasserproben enthalten die radioaktiven Substanzen in einer großen Menge von inaktivem Material verteilt. Ein großer Anteil der Strahlung wird bereits in der Probe selbst absorbiert - man spricht in so einem Fall von einer Selbstabsorption der Meßprobe. Meist muß man vor der Messung einer Wasserprobe eine Probenaufbereitung durchführen, um das radioaktive Material in einem kleinen Probevolumen zu konzentrieren. Bei diesen Aufarbeitungsschritten muß auf die niedrige Konzentration der radioaktiven Stoffe besonders geachtet werden. Man verwendet daher Trennschritte, die unerwünschte Adsorptions- oder Mitfällungseffekte vermeiden oder man fügt eine Verbindung des inaktiven Isotops des zu bestimmenden Radionuklides vor der Aufarbeitung der Probe zu.

Dieses inaktive Isotop muß in der gleichen chemischen Form vorliegen, wie das zu bestimmende Radionuklid. Man spricht in einem solchen Fall von einer Zugabe eines "Trägers". Man vermeidet dadurch die Bildung von Radiokolloiden und verringert die Adsorption an Schwebestoffen und an ionenaustauschaktiven Gefäßmaterialien (Laborglas hat eine Ionenaustauschkapazität von etwa $1,10^{-10}$ mol.cm⁻² für Alkalkation). Gibt man eine bekannte Menge eines Trägers

vor der Aufarbeitung zu, so kann man durch eine quantitative Bestimmung des Trägers nach der Aufarbeitung der Probe die Verluste bestimmen und entsprechend in Rechnung setzen (Prinzip der Isotopenverdünnung).

Als einfachste Aufarbeitungsmethode bietet sich das Verdunsten des Lösungsmittels Wasser an, falls, was in den meisten Fällen der Fall sein wird, das radioaktive Material im Wasser gelöst und nicht flüchtig vorliegt.

In einigen Fällen können Radionuklide aus Wasserproben nach Versetzen mit einer entsprechenden Menge an Trägermaterial ausgefällt oder an Ionenaustauschern adsorbiert werden. Als Beispiel sei die Adsorption aus Cäsium-137 an Hexacyanoferratkomplexen erwähnt. In der weitaus überwiegenden Anzahl der Fälle werden die Wasserproben jedoch eingedampft, um die Gesamtaktivität der Wasserprobe zu bestimmen.

Messung der Gesamtaktivität

Die Messung von Gesamtaktivität von Wasserproben ist für die Umgebungsüberwachung dann geeignet, wenn festgestellt werden soll, ob ein Radioaktivitätsniveau überschritten wird, z.B. ob in einem Abwasser, Grund- oder Oberflächenwasser überhaupt Radionuklide enthalten sind. Vielfach genügt dies, wenn man die Einhaltung behördlicher Vorschriften über die Radioaktivitätsabgaben überprüfen will, eine Veränderung eines Radioaktivitätsniveaus in einem Wassersystem festhalten will oder zur Entscheidungshilfe ob eine weitere Untersuchung der Probe erforderlich ist.

Diese Messungen reichen aber nicht aus, um Aussagen über das Verhalten von Nuklidgemischen in der Umwelt zu machen.

Gammaspektrometrische Analyse

Die Gammaspektrometrie ist zweifellos dasjenige Untersuchungsverfahren für radioaktive Proben jeder Art, welches die meiste Information über Art und Menge der radioaktiven Nuklide in einer Probe liefern kann. Man verwendet Szintillationsdetektoren oder wegen der weit besseren Auflösung Halbleiterdetektoren. Die Lage der Gammalinien im Spektrum ermöglicht eine qualitative Analyse der vorliegenden Radionuklide, die Messung der Intensitäten der Gammalinien ermöglicht eine quantitative Analyse.

Die Auswertungen gehören heute bereits in das Gebiet der routinemäßigen Datenverarbeitung und für die Auswertung von Gammaspektren ist die erforderliche Software in vielen anwendungsbedingten Varianten käuflich erhältlich.

Die meist sehr niedrigen Konzentrationen von Radionukliden in Wasserproben lassen sich oft nur sehr schwer neben der überall vorhandenen sogenannten Hintergrundstrahlung messen. Diese setzt sich aus verschiedenen Beiträgen zusammen, wie Eigenstrahlung des Detektors und der den Detektor umgebenden Abschirmung, terrestrische Strahlung, Höhenstrahlung und die durch den Radongehalt bedingte Radioaktivität der Luft in der Detektornähe. Die Eigenstrahlung von Detektor und Abschirmung kann durch geeignete Materialauswahl und -konstruktion niedrig gehalten werden. Die Auswirkung der Höhenstrahlung kann durch den Standort der Meßanordnung beeinflußt werden. Der Einfluß terrestrischer Strahlung und Luftaktivität wird durch eine Abschirmung von entsprechender Konstruktion vermindert. Als Abschirmmaterial geringer Eigenaktivität kommen dabei vor allem Eisen (vor 1945 erzeugter Stahl) und altes Blei in Frage.

Gammaskpektrometrische Messungen niedriger Aktivität sind meist sehr zeitaufwendig. So sind stundenlange Meßzeiten durchaus keine Seltenheit. Man nimmt aber diesen Nachteil in Kauf, da man eine Analyse von Radionukliden ohne langwierige chemische Auftrennung erreicht.

Messung von alphastrahlenden Radionukliden

Alphastrahlen werden schon durch dünne Schichten fester oder flüssiger Materialien (einige Hundertstel Millimeter) völlig abgeschirmt. Man muß daher Beimengungen und Fremdmaterialien bei der Bereitung von Meßproben für alphastrahlende Radionuklide vermeiden. Bei dicken Proben-schichten, wie sie nach dem Eindampfen von Wasserproben vorliegen, treten untragbar hohe Selbstabsorptionsverluste auf.

Man trennt daher die alphastrahlenden Radionuklide aus dem Probenmaterial durch entsprechende chemische Operation ab und scheidet diese Radionuklide elektrolytisch oder elektrochemisch auf Probenträger in sehr dünner, praktisch selbstabsorptionsfreier Schicht ab. Mit diesen Proben ist eine spektrometrische, demnach eine qualitative und quantitative Bestimmung von Alphastrahlen möglich. Man muß allerdings eine zeitraubende chemische Aufarbeitung in Kauf nehmen.

In der Hintergrundstrahlung kommen praktisch keine Teilchen oder Photonen vor, durch die eine ähnlich hohe Dichte an Ionen entlang ihrer Wegstrecke erzeugt wird, wie bei den Alphastrahlen. Alphastrahler lassen sich mit geeigneten Detektoren nahezu ohne Störung durch einen Untergrund messen und spektrometrisch analysieren.

Messung von Betastrahlern

Auch bei Betastrahlern spielt die Selbstabsorption eine beträchtliche Rolle. Bei Probendicken von einigen Millimetern sind auch bei energiereichen Betastrahlen sehr hohe Selbstabsorptionsverluste zu erwarten. Betastrahler zeigen kein Linienspektrum, sondern ein betastrahlendes Radionuklid emittiert Elektronen mit Energien von Null bis zu einem für das betrachtete Radionuklid charakteristischen Maximalwert. Eine instrumentelle Analyse eines Betastrahlengemisches stößt daher auf beträchtliche Schwierigkeiten. Man trennt daher meist die einzelnen betastrahlenden Radionuklide aus dem Nuklidgemisch ab, stellt geeignete Proben her und mißt die einzelnen Radionuklide.

Bei Messungen niedriger Aktivitäten von betastrahlenden Nukliden wendet man folgendes Verfahren an, um die Hintergrundstrahlung gering zu halten: Der Detektor wird von einem sogenannten Schirmzählrohr umgeben, welches auf die Umgebungsstrahlung anspricht. Kosmische, bzw. terrestrische Strahlung wird von Schirmzählrohr und innerem Detektor nachgewiesen. Strahlung aus der Probe nur vom inneren Detektor. Eine sogenannte Antikoinzidenzeinrichtung sorgt nun dafür, daß im Schirmzählrohr und Detektor gleichzeitig auftretende Impulse nicht gezählt werden, sondern nur jene Ereignisse registriert werden, die vom inneren Detektor allein nachgewiesen werden. Diese Zählrate ist ausschließlich durch die Radioaktivität der Probe bedingt.

Spezielle Aufarbeitungsverfahren von Wasserproben zur Bestimmung von Wasserstoff-3, Kohlenstoff-14 und Radiostrontium

Wasserstoff-3

Wasserstoff-3 (Tritium T) ist ein natürlich vorkommendes Radionuklid, wurde aber auch bei Kernwaffentests erzeugt und in die Umwelt eingebracht. Dieses Radionuklid findet sich im Wasser (als HTO) und nimmt am natürlichen Wasserkreislauf teil. Das natürliche Vorkommen von Tritium betrug vor der zusätzlichen Freisetzung bei Kernwaffenversuchen 200 - 900 Bq pro m³ Süßwasser und etwa 100 Bq pro m³ Meerwasser.

Für die Tritiumbestimmung werden Wasserproben zuerst einmal destilliert, um das Wasser von allen gelösten Feststoffen abzutrennen. Anreicherungsverfahren für HTO beruhen auf unterschiedlichen physikalischen Verhalten von H₂O und HTO. Heute hat sich die Elektrolyse allgemein durchgesetzt. Bei der elektrolytischen Zersetzung von Wasser reichern sich die schweren HTO-Moleküle im Elektrolyten an. Aus einer Probe von 250 ml Wasser bleiben nach einer Elektrolyse in einem Volumen von schließlich 15 ml 80 - 85 % des gesamten HTO zurück. Der Anreicherungsfaktor beträgt etwa 18. In diesen Proben wird das Tritium mittels Flüssigszintillationsmessung nachgewiesen. Dabei wird die Probe in eine Lösung eingebracht, die einen Szintillationsstoff, meist Phenylloxazolverbindungen, enthalten. Durch Wechselwirkung des Betateilchens mit dieser Lösung werden vom Szintillator Lichtquanten emittiert, welche registriert werden.

Kohlenstoff-14

Die Radiokohlenstoffaktivität vor Beginn des industriellen Zeitalters betrug 227 Bq pro kg Kohlenstoff im natürlichen Kohlenstoffzyklus.

In Wasserproben kann Kohlenstoff-14 im gelösten Kohlendioxid oder in Karbonaten enthalten sein. Diese Verbindungen werden in unlösliche Karbonate (z.B. Bariumkarbonat) übergeführt und abgetrennt. Nach der Zersetzung mit Säure läßt man das aus den Karbonaten gebildete Kohlendioxid mit Lithium zu Lithiumcarbid reagieren. Aus der Reaktion von Lithiumcarbid mit Wasser enthält man Acetylen, welches mit Hilfe von Katalysatoren zu Benzol umgesetzt wird. Dieses Benzol kann als Lösungsmittel für die Bereitung von Meßproben für die Flüssigszintillationsspektrometrie verwendet werden. Aus den Ergebnissen von Radiokohlenstoffbestimmungen können Schlüsse auf das "Alter" von Proben gezogen werden. Dies ist besonders bei der Untersuchung von Tiefenwässern von Interesse.

Radiostrontium

Wegen seiner hohen Radiotoxizität schenkt man dem Strontium-90 besondere Aufmerksamkeit in der radiologischen Umgebungsüberwachung. Aus den Ergebnissen von Radiostrontiumbestimmungen können aber auch Schlüsse auf den Zeitpunkt einer Spaltproduktfreisetzung gezogen werden.

Strontium-90 zerfällt mit einer Halbwertszeit von etwa 30 Jahren in Yttrium-90, dieses zerfällt mit einer Halbwertszeit von 64 Stunden in stabiles Zirkonium. Wasserproben, die mit frischen Spaltungsprodukten verunreinigt sind (Kernwaffentests, Reaktorunfall) enthalten auch Strontium-89, das mit einer Halbwertszeit von 50 Tagen

in das stabile Yttrium-89 zerfällt. Alle eben angeführten Radionuklide emittieren ausschließlich Betateilchen, sind also durch Gammaskpektrometrie nicht nachweisbar. Durch einen entsprechenden Trennungsgang wird aus der Probe Strontium abgetrennt. Diese Strontiumfraktion enthält nun Strontium-90 und Strontium-89. Yttrium-90 wächst als Tochterprodukt des Strontium-90 in der abgetrennten Strontiumfraktion nach. Nach einigen Tagen kann man aus der Strontiumfraktion das nachgebildete Yttrium-90 abtrennen und aus der Messung von Yttrium auf das im Gleichgewicht vorliegende Strontium-90 schließen. Die Messung der Strontiumfraktion nach der Yttriumabtrennung ergibt die Strontium-90- und Strontium-89-Gesamtaktivität. Die Aktivität von Strontium-90 kann außerdem aus den Ergebnissen der Yttriummessung errechnet werden. Nun kann der Beitrag des Strontium-89 ermittelt werden. Aus dem Gehalt an kurzlebigen Strontium-89 gegenüber dem Strontium-90 in der Radiostrontiumfraktion kann auf den Zeitpunkt der Freisetzung der Spaltprodukte geschlossen werden. Je niedriger der relative Anteil des Strontium-89 an der durch Radionstrontium bedingten Aktivität ist, desto länger liegt der Zeitpunkt der Freisetzung frischer Spaltprodukte zurück.

Strahlenbelastung der Bevölkerung in Österreich durch Radionuklide in der Donau

Die Ergebnisse von Radioaktivitätsmessungen von Wasserproben können als wichtige Daten für weitere Untersuchungen herangezogen werden. Aus der qualitativen und quantitativen Zusammensetzung lassen sich Schlüsse auf den Verursacher ziehen. Bei Berücksichtigung der möglichen "Belastungspfade" können Angaben über die Strahlendosis gemacht werden, die jene Bevölkerungsgruppe erleidet, die auf eine bestimmte Art und Weise dieses Gewässer nutzt. Grundsätzlich sind

durch Wasser folgende Belastungspfade möglich:

Interne Strahlenbelastung

Trinkwasser

Fischkonsumation

Viehtränke - Milch - Fleisch

Wasser - Boden - Pflanze - Futter

Externe Strahlenbelastung

Schwimmen, Bootfahren

Sedimentaufenthalt

Nutzung von Flußschlamm

Im Rahmen einer Untersuchung über mehrere Jahre wurden am Atominstitut der Österreichischen Universitäten in Donauwasserproben eine Reihe von Radionukliden qualitativ und quantitativ bestimmt. Es wurden natürlich vorkommende Radionuklide sowie vom Menschen in die Biosphäre eingebrachte Nuklide gemessen (z. B. Wasserstoff-3, Strontium-89 und Strontium-90, Cäsium-137).

Abb. 1 zeigt die jahreszeitlichen Schwankungen des Gehaltes an Cäsium-137 im Donauwasser in den letzten Jahren. Diese Schwankungen sind durch das Abschmelzen von Schnee und Eis im Gebiet der Zuflüsse bedingt.

Als Belastungspfad wurde die Aufnahme von Radionukliden aus der Donau durch Trinkwasserkonsum ausgewählt. Mit Hilfe der Konversionsfaktoren kann aus der aufgenommenen Menge an radioaktivem Material die Bestrahlungsdosis ermittelt werden. Bei einer Trinkwasseraufbereitung wird ein Teil des radioaktiven Materials aus dem Wasser entfernt.

Ein Trinkwasseraufbereitungsfaktor berücksichtigt die Dekontaminationswirkung bei der Behandlung von Trinkwasser.

In Tab. 1 sind die für das Jahr 1977 errechneten Werte für die Dosisbelastung, die durch eine Verwendung von Donauwasser als Trinkwasser bedingt wären, angeführt.

In den Jahren 1978 bis 1982 sind die Aktivitätskonzentrationen im Donauwasser noch weiter gesunken.

Vergleicht man die Werte dieser Dosisbelastung mit der natürlichen Strahlendosis durch kosmische und terrestrische Strahlung in Österreich, so sieht man, daß die Strahlenbelastung durch Donauwasser um den Faktor Tausend niedriger liegt.

Auch die durch den Fischverzehr bedingte jährliche Strahlenbelastung läßt sich errechnen. Man muß dabei die durch den Fisch auftretende Aufkonzentrierung der Radionuklide gegenüber dem Wasser in Rechnung setzen. Wie Tab. 2 zeigt, ist diese Strahlenbelastung noch erheblich geringer, als die Belastung durch Trinkwasser aus der Donau. Eine Schädigung der Bevölkerung infolge Strahlenbelastung durch Radionuklide aus dem Donauwasser kann unter den gegenwärtigen Verhältnissen ausgeschlossen werden.

Abb. 1: Jahreszeitliche Schwankungen der Cäsium-Aktivitätskonzentration im Donauwasser. Die Ergebnisse wurden durch gammaspektrometrische Messungen durch Proben gewonnen, die nach Eindampfen von 30 kg Donauwasser erhalten wurden.

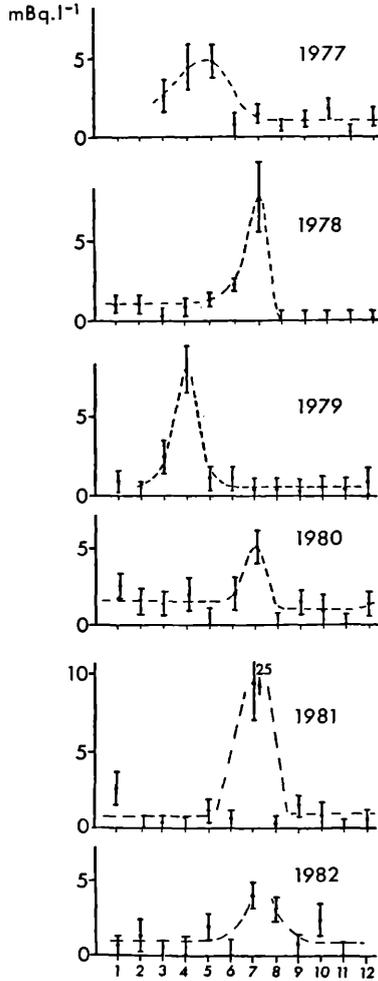


Tabelle 1: Dosisbelastung bei Verwendung von Donauwasser als Trinkwasser

Radionuklid	mittlere Konzentration im Wasser mBq/kg	Ingestion Bq/a ^{x)}	Konversionsfaktor Sv/Bq	Jahresdosis (ohne Aufbereitung) Sv.10 ⁻⁸	Trinkwasseraufbereitungsfaktor	Jahresdosis (mit Aufbereitung) Sv.10 ⁻⁸
³ H	13.600	6.000	2.0 x 10 ⁻¹¹	12	1	12
⁹⁰ Sr	5.6	2.5	4.0 x 10 ⁻⁸	10	0.5	5
¹³⁷ Cs	1.9	0.84	1.4 x 10 ⁻⁸	1.2	0.2	0.2
⁸⁹ Sr	1.9	0.84	2.2 x 10 ⁻⁸	0.2	0.5	0.1
⁹⁵ Nb	3.3	1.5	3.1 x 10 ⁻¹⁰	0.05	0.1	0.005
²²⁶ Ra	3	1.3	7 x 10 ⁻⁷	91	0.5	46
^U _{nat}	6	2.6	1.3 x 10 ⁻⁶	340	0.5	176
⁴⁰ K	56	25		unter homöostatischer Kontrolle im Körper		
Gesamtdosis						230

x) bei einem Trinkwasserkonsum von 440 Liter pro Jahr

Tabelle 2: Dosisbelastung durch Fischverzehr (0,5 kg pro Jahr)

Radionuklid	mittlere Konzentration im Donauwasser mBq/kg	Konzentrationsfaktor	Konversionsfaktor Sv/Bq	Jahresdosis Sv.10 ⁻⁸
Sr-90	5.6	5	4.0 x 10 ⁻⁸	0.1
Cs-137	1.9	500	1.4 x 10 ⁻⁸	1.3
Ra-226	3	5	7.0 x 10 ⁻⁷	1.0
^U _{nat}	6	5	1.3 x 10 ⁻⁶	4.0
Nb-95	3	500	3.1 x 10 ⁻¹⁰	0,05
Gesamt				6.4

Anschrift des Verfassers: Univ.-Prof.Dr. Karl BUCHELTA, Atominstiut der Österreichischen Universitäten, Schüttelstraße 115, A-1020 W i e n

ZOBODAT - www.zobodat.at

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [Wasser und Abwasser](#)

Jahr/Year: 1984

Band/Volume: [1984](#)

Autor(en)/Author(s): Buchtela K.

Artikel/Article: [Radioaktivitätsmessung von Wasserproben 105-118](#)